

**MESSUNG DER
STRATOSPHERISCHEN OZONKONZENTRATION
MIT HILFE EINES LASER-RADAR-SYSTEMS**

Dissertation
der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von
JOACHIM WERNER
aus Eichstätt

1985

München, den ~~21. Dezember 1984~~

**MESSUNG DER
STRATOSPHERISCHEN OZONKONZENTRATION
MIT HILFE EINES LASER-RADAR-SYSTEMS**

Dissertation
der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von
JOACHIM WERNER
aus Eichstätt

München, den 21. Dezember 1984

MESSUNG DER
STRATOSPHERISCHEN OZONKONZENTRATION
MIT HILFE EINES LASER-RADAR-SYSTEMS

Dissertation
zur Erlangung des Grades
des Doktors der Naturwissenschaften
an der Universität München

verfasst von
JOACHIM WERNER

1. Gutachter: Prof. Dr. H. Walther
2. Gutachter: Prof. Dr. H. W. Schrötter

Tag der mündlichen Prüfung: 27. 2. 1985

München, den 21. Dezember 1984

ZUSAMMENFASSUNG

Die Problematik der Einwirkung des Menschen auf seine Umwelt ist heutzutage Gegenstand einer lebhaft geführten Diskussion. Es besteht daher ein großes Interesse an der Entwicklung neuer Verfahren zur Messung der Konzentration anthropogener Spurenstoffe und ihrer Einwirkung auf die Umwelt.

Von besonderer Bedeutung ist in diesem Zusammenhang die Ozonschicht der Erde, deren Maximum in etwa 25 km Höhe liegt. Vor etwa zehn Jahren wurde erstmals theoretisch untersucht, welchen Einfluß anthropogene Spurenstoffe auf die atmosphärische Ozonschicht nehmen. Dabei wurde festgestellt, daß durch die Photolyse von chlorierten Kohlenwasserstoffen in Höhen von etwa 40 km freie Chloratome entstehen, die in einer katalytischen Abbaureaktion die Ozonkonzentration reduzieren können. Auch verfeinerte Modellrechnungen haben in der Zwischenzeit diesen Abbaumechanismus bestätigt. Als mögliche Folgen werden Veränderungen des stratosphärischen Temperaturprofils, der atmosphärischen Zirkulation und des Klimas diskutiert.

Heutige Ozonmeßtechniken sind jedoch nur sehr eingeschränkt in der Lage, diese Prognosen zu überprüfen, weil insbesondere im kritischen Bereich um 40 km Höhe eine genaue, höhenauflösende und kontinuierliche Meßtechnik bisher nicht zur Verfügung stand.

In der vorliegenden Arbeit wird eine neuentwickelte Laser-Radar-Apparatur zur Bestimmung der atmosphärischen Ozonkonzentration auf der Grundlage der Differentiellen Absorption vorgestellt. Bei diesem Verfahren wird von einem gepulsten Hochleistungslaser gleichzeitig Licht zweier verschiedener Wellenlängen senkrecht in die Atmosphäre emittiert. Die Laufzeit der rückgestreuten Strahlung liefert - wie beim Radar - die Information über die Höhe; die Verwendung von zwei Wellenlängen mit unterschiedlichem Absorptionsverhalten (im Folgenden Absorptions- und Referenzwellenlänge genannt) ermöglicht die Ermittlung des Konzentrationsprofils der zu messenden Substanz.

Im Falle des Ozons liegen breite Absorptionsbanden in einem Spektralbereich im nahen Ultraviolett (UV), in dem auch einige Excimerlaser emittieren. Diese Laser zeichnen sich durch hohe Dauerleistung, schnelle Pulsfolge und kurze Pulsdauer aus. Für Ozonmessungen in der oberen Stratosphäre liefert insbesondere XeCl als Füllgas eine ideale Laserlichtquelle aufgrund seiner nur mäßigen Absorption durch Ozon. Weil Excimerlaser praktisch nicht abstimmbar sind, wurde für die Erzeugung der Referenzwellenlänge erstmals die Technik der stimulierten Raman-Streuung eingesetzt.

Eine derartige Laser-Radar-Anlage hat sich in einem fast zweijährigen Feldeinsatz auf der Zugspitze (2964 m) bestens bewährt. Dabei wird für das Sendesystem ein kommerzieller XeCl-Excimerlaser (150 mJ Pulsenergie, 100 Hz Repetitionsrate) eingesetzt. Für die Erzeugung der Referenzwellenlänge wird H_2 als Raman-Medium verwendet. Die Senderdivergenz wird durch ein Strahlaufweitungssystem auf 0.4 mrad verringert.

Der Empfangsspiegel hat 60 cm Durchmesser und 2.4 m Brennweite. Er fokussiert das rückgestreute Licht auf eine kompakte Detektoreinheit. Ein dichroitische Filter teilt die beiden Wellenlängen. Der Nachweis erfolgt durch zwei Photomultiplier, die im Photon-Counting-Mode betrieben werden. Zum Schutz vor Übersteuerung ist im Strahlengang des Detektorsystems eine schnelldrehende Lochscheibe angebracht, so daß die Photomultiplier gegen das intensive Rückstreusignal aus den ersten Höhenkilometern abgedeckt werden können.

Hervorzuheben sind bei diesem System neben dem Fehlen von Querempfindlichkeiten insbesondere die guten Dauerbetriebseigenschaften. Die günstige Witterung ermöglichte es beispielsweise, im September 1983 in fünfzehn Nächten Messungen durchzuführen. Aufgrund der hohen Intensität und Wiederholfrequenz des Lasers konnte der statistisch bedingte Fehler in der Ozonkonzentration bis in etwa 40 km Höhe in der Größenordnung von einem Prozent gehalten werden, wobei eine Ortsauflösung zwischen einem und fünf Kilometer erreicht wurde.

Für diese hohe Genauigkeit ist bis 30 km Höhe eine Integrationsdauer von weniger als 30 Minuten erforderlich, in 40 km Höhe wird eine Mittelung über ca. zehn Stunden benötigt. Die Zuverlässigkeit dieser Apparatur bestätigt auch der Vergleich mit einer anderen Ozonmeßtechnik, bei der ballongetragene naßchemische Zellen eingesetzt werden: es hat sich eine gute Übereinstimmung des monatlichen Mittelwertes der Ozonkonzentration im Vergleichszeitraum (September 1983) ergeben.

Die im Verlauf der zweijährigen Meßkampagne aufgenommenen Ozonprofile zeigen einen stark unterschiedlichen Jahresgang der Ozonkonzentration in verschiedenen Höhen. Während in der unteren Stratosphäre (rund 20 km Höhe) ein ausgeprägtes Maximum im Winter auftritt, liegt in Höhen über 30 km das Maximum im Sommer. Die starke natürliche Variabilität der Ozonkonzentration macht es dabei unmöglich, bereits in einem Beobachtungszeitraum von knapp zwei Jahren eine Entscheidung über einen Abbau des Ozons in 40 km Höhe zu treffen.

Das hier vorgestellte Lidarsystem ist auch dazu geeignet, hohe stratosphärische Aerosolkonzentrationen, wie sie nach außergewöhnlich starken Vulkaneruptionen auftreten können, nachzuweisen. Ein derartiges Ereignis fand wenige Monate vor Beginn des Meßbetriebs statt. Das zeitliche Verhalten der resultierenden Aerosolwolke konnte detailliert beobachtet werden.

Einige Ergebnisse der vorliegenden Arbeit wurden bereits an anderer Stelle veröffentlicht /1,2/.

INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
Einleitung	1
1. Messungen mit Lasern in der Atmosphäre	5
1.1. Das Lidarprinzip	5
1.2. Das Verfahren der differentiellen Absorption (DIAL)	8
2. Das Ozonproblem	13
3. Die Anwendung der DIAL-Technik für Ozonmessungen	17
3.1. Wahl des Meßbereichs	17
3.2. Erzeugung der Referenzwellenlänge durch stimulierte Raman-Streuung	19
3.3. Beschreibung der Apparatur	25
4. Diskussion der Genauigkeit	33
4.1. Mögliche Querempfindlichkeiten	33
4.2. Statistische Genauigkeit bei Nachtmessungen	34
4.3. Statistische Genauigkeit bei Tagmessungen	39
4.4. Einfluß des unterschiedlichen atmosphärischen Streuverhaltens bei den beiden Meßwellenlängen	45
4.5. Das Absorptionsverhalten von Ozon in der Hugginsbande	61
4.6. Gesamtbetrachtung	63
5. Meßergebnisse	64
5.1. Der Jahresgang der Ozonkonzentration	64
5.2. Einige ausgewählte Aspekte	70
5.3. Vergleich mit Ballonsondenaufstiegen	73
6. Ausblick	77
Literaturverzeichnis	81
Lebenslauf	84

Einleitung

Der technische Fortschritt erleichtert dem Menschen zunehmend sein Dasein. In wachsendem Maße ist damit jedoch eine starke Belastung unserer Umwelt verbunden. Insbesondere die steigende Luftverschmutzung rückt immer mehr in das Bewußtsein der Öffentlichkeit. Das zeigen die Diskussionen um die Ursachen des Waldsterbens, um die Einführung von Katalysatoren für Autoabgase und Entschwefelungsanlagen für Kraftwerke. Des weiteren steht die Problematik des wachsenden Kohlendioxidgehalts in der Atmosphäre und des möglichen Abbaus der Ozonschicht durch anthropogene Chlorverbindungen im Blickpunkt des Interesses /3/.

Gerade die letzten Beispiele machen deutlich, wie notwendig ein genaues Verständnis des Verhaltens der Atmosphäre gegenüber den ihr vom Menschen aufgezwungenen Veränderungen ist. Dieses Gebiet ist daher im Moment Gegenstand intensiver Forschung /4,5/. Dafür ist z. B. die Simulation des Ablaufs chemischer und photochemischer Reaktionen sowie eine präzise Kenntnis der Konzentrationen der wichtigsten Spurenstoffe erforderlich.

Zu diesen Substanzen ist wegen seiner Absorptionseigenschaften im nahen UV und seiner hohen Konzentration in der Stratosphäre auch das Ozon zu rechnen. In der Vergangenheit wurden bereits erhebliche Anstrengungen unternommen, die Ozonkonzentration der Atmosphäre zu bestimmen. Dobson und Harrison entwickelten schon in den zwanziger Jahren ein Spektrophotometer, das den Gesamtzongehalt aus dem Vergleich der atmosphärischen Extinktion der solaren UV-Strahlung bei verschiedenen Wellenlängen bestimmt. Die längste zusammenhängende Meßserie des Gesamtzons (Arosa/Schweiz) reicht bis in die dreißiger Jahre zurück /6/. Eine derart lange Meßreihe ist wegen der starken natürlichen Schwankung des Ozongehalts von größter Wichtigkeit. In der Zwischenzeit gibt es ein ausgedehntes Netz von Stationen rund um die Erde.

Seit etwa 20 Jahren versucht man, die Dobsontechnik auch für Messungen des Ozonvertikalprofils einzusetzen. Bei dieser sog. Umkehrtechnik /6/ wird die unterschiedliche atmosphärische Extinktion bei sehr großen solaren Zenitwinkeln untersucht. Mit dieser Methode können Vertikalprofile bis in 60 km Höhe mit einer Höhenauflösung von etwa 4 km gewonnen werden. Im Bereich um 30 km wird dabei eine Genauigkeit von etwa 6 % angegeben, für alle anderen Höhenbereiche ist die Genauigkeit bestenfalls 10 % /7/. Regelmäßige Messungen werden zur Zeit an etwa 20 Stationen vorgenommen, die fast alle in der Nordhemisphäre gelegen sind. Dabei führt im Durchschnitt jede Station etwa zehn Messungen pro Monat durch.

Eine andere inzwischen routinemäßig eingesetzte Technik basiert auf ballongetragenen elektrochemischen Sonden, die die Reaktion des Ozons mit einer Kaliumjodidlösung ausnützen. Es gibt weltweit etwa 15 Stationen, an denen normalerweise ein bis zwei Aufstiege pro Woche durchgeführt werden. Die Ortsauflösung beträgt wenige hundert Meter. Die Genauigkeit wird mit 5 % angegeben; sie nimmt allerdings zu großen Höhen hin ab. Diese Meßmethode arbeitet bis zu einer Höhe von maximal 35 km. Durch den Druckabfall in noch größeren Höhen würde die Kaliumjodidlösung ihren Tripelpunkt erreichen.

Die in den letzten Jahren geführte Diskussion um einen möglichen Abbau der Ozonschicht durch Chlorkohlenwasserstoffe /4,8/ hat nun das Interesse besonders auf den Bereich um 40 km Höhe gelenkt, der mit diesen beiden Methoden nur sehr ungenau (Umkehrtechnik) bzw. grundsätzlich nicht (elektrochemische Ballonsonden) erfaßt werden kann. Die Problematik des Ozonabbaus durch Chlorkohlenwasserstoffe macht jedoch die routinemäßige und sehr genaue Erfassung des Ozonvertikalprofils in etwa 40 km Höhe erforderlich.

Es gibt zwar noch andere höhenauflösende Ozonmeßtechniken /7/, die aber aus verschiedenen Gründen für diesen Zweck nicht geeignet erscheinen. Zum größten Teil handelt es sich dabei um ballongetragene Systeme, so daß an einen routinemäßigen Einsatz dieser Methoden in Höhen um 40 km schon aus finanziellen, aber auch aus luft-

fahrtrechtlichen und technischen Gründen wohl kaum zu denken ist. Hinzu kommt, daß die für gewöhnlich praktizierte Bestimmung der aktuellen Flughöhe durch Druckmeßgeräte eine zusätzliche, nicht zu vernachlässigende Fehlerquelle darstellt. Auf Ballone angewiesen sind sowohl mehrere in-situ-Verfahren (Ozonnachweis z.B. mit Hilfe eines Massenspektrometers, durch eine Chemilumineszenzreaktion oder mittels einer Absorptionszelle) als auch optische Verfahren (Filterradiometer), die die Absorption der solaren Ultraviolettstrahlung als Funktion der Flughöhe bestimmen und daraus das Ozonkonzentrationsprofil ableiten.

Der Wert dieser Verfahren für die Messung in der oberen Stratosphäre liegt hauptsächlich in der punktuellen Kontrolle anderer Ozonmeßtechniken, die routinemäßig eingesetzt werden können.

Um die gerade diskutierten Schwierigkeiten beim Erreichen großer Höhen mit Hilfe von Ballonen zu umgehen, bieten sich Fernmeßverfahren an. Hier wäre die Mikrowellentechnik hervorzuheben, die es erlaubt, die Ozonkonzentration in Höhen zwischen 40 und 90 km zu messen. Die Genauigkeit dieser bodengebundenen Technik ist jedoch auf bestenfalls 10 % begrenzt.

Eine Alternative stellen die in den letzten Jahren ständig weiterentwickelten Satellitenmeßtechniken dar. Die Streuung des UV-Anteils des Sonnenlichts aus der Erdatmosphäre zurück in den Weltraum (die sog. BUV-Methode) gestattet hierbei die Bestimmung des Gesamt ozons wie auch die Ableitung eines Ozonprofils. Allerdings ist die bisher erzielte Genauigkeit (5 %) und Höhenauflösung (8 km) noch nicht zufriedenstellend /3/.

Vor etwa acht Jahren wurde auch damit begonnen, Lidarsysteme für Ozonmessungen in der Atmosphäre einzusetzen /9-12/. Aufgrund der geringen Pulsenergie und niedrigen Wiederholfrequenz der dabei verwendeten Laser war es bisher lediglich möglich, in der Troposphäre und unteren Stratosphäre eine befriedigende Genauigkeit zu erzielen. Erst die Entwicklung von Hochleistungsexcimerlasern schuf in den letzten Jahren die Voraussetzung für Messungen auch in der oberen Stratosphäre.

Im Folgenden wird ein Laser-Radar-System auf der Basis eines XeCl-Excimerlasers vorgestellt, wobei die Referenzwellenlänge erstmals durch stimulierte Raman-Streuung erzeugt wird. Diese Apparatur gestattet die kontinuierliche und genaue Messung des Ozonkonzentrationsprofils bis in über 40 km Höhe. Die damit erzielbare hohe Meßgenauigkeit ist sowohl im Hinblick auf eine Überprüfung des vorhergesagten Ozonabbaus wie auch zusätzlich für eine Verbesserung der Modellvorstellungen von Bedeutung.

1. Messungen mit Lasern in der Atmosphäre

1.1. Das Lidarprinzip

Der überwiegende Teil der Verfahren zur Messung in der Atmosphäre, insbesondere zur Bestimmung von Spurenstoffen, basiert auf der Probenahme vor Ort (in situ). Die verwendeten Techniken sind dabei sehr unterschiedlich. Zum Beispiel ist mit Hilfe von Ballonaufstiegen oder Flugzeugstarts die kryogene Sammlung von Meßproben möglich, die anschließend im Labor gaschromatographisch und massenspektrometrisch untersucht werden. Damit kann beispielsweise der Gehalt an verschiedenen Chlorkohlenwasserstoffen - aber auch an H_2 , N_2O , CO und CO_2 - in Höhen bis über 40 km bestimmt werden /13/. Auch Partikelzähler zur direkten Untersuchung stratosphärischer Aerosole /14/ und naßchemische Zellen zur Messung des Ozons in der unteren Atmosphäre /15/ können mit Hilfe von Ballonen eingesetzt werden. Die Nachteile einer Probenahme vor Ort liegen vor allem in einer möglichen unerwünschten Wechselwirkung der Apparatur mit dem Meßvolumen (Kontamination) wie auch dem Problem, daß plötzlich auftretende funktionelle Störungen während eines Fluges nicht behoben werden können.

Fernmeßverfahren bedienen sich dagegen optisch-spektroskopischer Methoden und lassen daher einen bodengebundenen Aufbau der Apparatur zu. Die gerade erwähnten Nachteile sind damit vermieden. Passive Techniken benützen meist die Sonne, seltener auch Mond und Sterne, als Lichtquelle. Seit ca. 20 Jahren ermöglicht der Einsatz von Lasern die Anwendung aktiver Techniken, die sich unter dem Begriff Laser-Radar (Lidar) zusammenfassen lassen. Die geringe Strahldivergenz und hohe spektrale Reinheit, dazu in vielen Fällen die Abstimmbarkeit der Strahlung, sind dafür hervorragende Voraussetzungen.

Das Grundprinzip einer Lidarmessung besteht darin, daß der vom Laser emittierte Lichtstrahl bei seiner Ausbreitung mit atmosphärischen Substanzen wechselwirkt. Letztendlich kann aus dieser Wechselwirkung (Streuung, Absorption, Fluoreszenz) die Konzentration der beteiligten Substanzen abgeleitet werden. Infolgedessen gibt es eine Vielzahl verschiedener Lidartechniken, die auf eine

jeweils spezielle Anwendung optimiert sind: zum Beispiel nutzen Aerosollidar und Ramanlidar die Streueigenschaften atmosphärischer Substanzen, es werden jedoch auch Fluoreszenz und Absorption für entsprechend benannte Lidartechniken ausgenutzt (s.u.; ein Überblick findet sich in /16,17/).

Alle diese Techniken basieren auf dem gleichen Grundprinzip: jede Wechselwirkung, insbesondere die unvermeidliche Streuung an Gasmolekülen und Partikeln (Staub und Tröpfchen), verursacht eine fortlaufende Schwächung des Strahls. Ein geringer Bruchteil des elastisch oder resonant gestreuten Lichtes wird dabei auch in Richtung des Lidarsystems zurückgestreut und kann dort nachgewiesen werden. Als Empfänger dient meist ein Spiegelteleskop, das die rückgestreute Strahlung auf einen Photodetektor (Multiplier oder Diode) fokussiert. Das dort erzeugte elektrische Signal ist proportional der optischen Leistung.

Da die Lichtgeschwindigkeit bekannt ist, gibt die Laufzeit des Rückstreusignals Aufschluß über die Entfernung. Aus der Intensität des Rückstreusignals, die bestimmt ist durch die atmosphärischen Rückstreueigenschaften und durch die Extinktion auf dem Weg durch die Atmosphäre, läßt sich die Konzentration der interessierenden Spurensubstanz ableiten.

Wird von einer Länge des Laserpulses ausgegangen, die sehr kurz ist im Vergleich zur angestrebten Ortsauflösung, so ist die Zahl der Photonen $M(R, \lambda)$, die von einer Schichtdicke ΔR in einer mittleren Entfernung R zurückgestreut werden, gegeben durch:

$$M(R, \lambda) = \epsilon \cdot F \cdot M_O(\lambda) \cdot \Delta R \cdot \beta(R, \lambda) \cdot T^2(0, R, \lambda) \cdot 1/R^2 \quad (1)$$

Hierbei ist

- $M_O(\lambda)$ die ursprünglich vom Laser in die Atmosphäre emittierte Zahl der Photonen
- ϵ die Effizienz des Nachweissystems
- F die Fläche des Empfangsspiegels
- T die Transmission der Atmosphäre vom Sender bis zur Entfernung R
- β der Rückstreuoeffizient

Der Rückstreuukoeffizient (Rückstreuwinkel π) ist bestimmt durch

$$\beta(R, \lambda) = \sum_i \beta_i(R, \lambda) = \sum_i \left((n_{sc}(R) \cdot \sigma(\pi; \lambda)) \right)_i \quad (2)$$

$\sigma(\pi; \lambda)$ ist der differentielle Rückstreuwirkungsquerschnitt und $n_{sc}(R)$ ist die Konzentration des jeweiligen rückstreuenden Mediums.

Die Transmission ist durch das Lambert-Beersche Gesetz gegeben:

$$T^2(0, R, \lambda) = \exp \left\{ - 2 \int_0^R \alpha(R', \lambda) dR' \right\} \quad (3)$$

Hierbei ist der Extinktionskoeffizient α gegeben durch das Produkt aus der Dichte der abschwächenden Substanz $N(R)$ und ihrem totalen Wirkungsquerschnitt $\sigma(\lambda)$:

$$\alpha(R, \lambda) = \sum_i \alpha_i(R, \lambda) = \sum_i \left(N(R) \cdot \sigma(\lambda) \right)_i \quad (4)$$

Die Summation soll verdeutlichen, daß es sich dabei im allgemeinen um mehrere Extinktionsmechanismen handelt, wobei sowohl Absorptions- als auch Streuprozesse wesentliche Beiträge liefern können.

Die Anwendbarkeit der Gl. (1) ist sehr weitreichend, wobei die physikalische Bedeutung der Terme β und T von der verwendeten Lidartechnik (Aerosollidar, Fluoreszenzlidar, Ramanlidar, Differentielle Absorption) abhängt /16,17/.

Der Rückstreuukoeffizient β ist gegeben durch

- die Rayleighstreuung der Luft und die Miestreuung der Aerosole im Falle des Aerosollidar und der Differentiellen Absorption
- die (resonante) Streuung an der zu untersuchenden Substanz im Fall des Raman- und Fluoreszenzlidar

Die Transmission durch die Atmosphäre

- wird beim Aerosollidar und dem Ramanlidar allein durch Rayleigh- und Miestreuung vermindert.
- Bei der Differentiellen Absorption und beim Fluoreszenzlidar spielt zusätzlich die Absorption der zu untersuchenden Substanz eine Rolle.

Die interessierende Information, nämlich die Konzentration einer bestimmten Substanz, ist also je nach verwendeter Technik in β und/oder T enthalten.

- Beim Aerosollidar geht die Aerosolkonzentration sowohl in β als auch in T ein.
- Beim Ramanlidar und beim Fluoreszenzlidar ist die interessierende Information hauptsächlich in β enthalten.
- Bei der Differentiellen Absorption ist ausschließlich T der Informationsträger. Im Folgenden wird auf diese Technik näher eingegangen.

1.2. Das Verfahren der Differentiellen Absorption (DIAL)

Beim Verfahren der Differentiellen Absorption (abgekürzt DIAL) wird die Laserwellenlänge λ_1 auf eine Absorptionslinie der zu messenden atmosphärischen Spurensubstanz abgestimmt, so daß der in die Transmission eingehende Extinktionskoeffizient gegeben ist durch

$$\alpha(\lambda_1) = \alpha_R(\lambda_1) + \alpha_M(\lambda_1) + \alpha_S(\lambda_1) \quad (5)$$

Die Indices R, M und S bezeichnen die Extinktion durch Rayleighstreuung (R) und Aerosolstreuung (M) sowie durch die Absorption der zu messenden Substanz (S). Die Rückstreuung ist dann entsprechend durch

$$\beta(\lambda_1) = \beta_R(\lambda_1) + \beta_M(\lambda_1) \quad (6)$$

gegeben. Damit ließe sich bereits aus Gl. (1) - (6) die Konzentration der absorbierenden Substanz N_S ableiten, weil ja

$$\alpha_S(\lambda_1) = N_S \cdot \sigma_S(\lambda_1) \quad (7)$$

gilt (σ ist hier der Absorptionswirkungsquerschnitt). Dies ist jedoch nur dann möglich, wenn die Konzentration und das Streuverhalten der Luftmoleküle und Aerosole auf der gesamten Wegstrecke zwischen Sendesystem und Meßvolumen genau bekannt ist.

Die Streuung an Luftmolekülen (Rayleighstreuung) ist verhältnismäßig einfach zu berücksichtigen, da die Luftdichte als Funktion der Höhe und Jahreszeit tabellarisch gut erfaßt ist /18,19/ und das Streuverhalten sehr genau bekannt ist.

Wesentlich komplizierter sind die Verhältnisse bei der Aerosolstreuung. Zum einen variiert die Konzentration der Aerosole - vor allem in Bodennähe - in weiten Grenzen. Zum anderen ist ihr Streuverhalten abhängig von der Größenverteilung, der chemischen Zusammensetzung und nicht zuletzt durch die geometrische Gestalt der Aerosole bestimmt /20/. Der Beitrag der Aerosole kann daher in weiten Grenzen variieren.

Die Genauigkeit von Absorptionsmessungen läßt sich daher entscheidend verbessern, wenn es gelingt, den Einfluß der Streuprozesse auf die Genauigkeit der Messung möglichst klein zu halten. Zu diesem Zweck bildet man den Quotienten aus der Zahl der rückgestreuten Photonen für zwei aneinandergrenzende Entfernungsbereiche $R_1 \mp \delta R_1/2$ und $R_2 \mp \delta R_2/2$:

$$q(R_1, R_2, \lambda_1) = \frac{M(R_1, \lambda_1)}{M(R_2, \lambda_1)} = \frac{\delta R_1 \cdot (\beta_R(R_1) + \beta_M(R_1)) \cdot R_2^2}{\delta R_2 \cdot (\beta_R(R_2) + \beta_M(R_2)) \cdot R_1^2} \cdot T^2(R_1, R_2, \lambda_1) \quad (8)$$

Hiermit werden nicht nur Apparaturparameter wie die Ausgangsenergie des Lasers und die Effizienz des Nachweissystems eliminiert, sondern auch der Einfluß des Transmissionsterms auf den Bereich zwischen R_1 und R_2 eingeschränkt.

Der Einfluß der Streumediten kann weiter reduziert werden, wenn man zusätzlich Messungen bei einer zweiten Wellenlänge durchführt. Sie sollte so gewählt werden, daß der Absorptionswirkungsquerschnitt der zu untersuchenden Spurenschubstanz eine möglichst starke Änderung erfährt ($\sigma_S(\lambda_2) \ll \sigma_S(\lambda_1)$). λ_2 bezeichnet man daher als Referenzwellenlänge, λ_1 als Absorptionswellenlänge. Dann gilt näherungsweise für die Differenz der Absorptionswirkungsquerschnitte $\Delta\sigma_S = \sigma_S(\lambda_1) - \sigma_S(\lambda_2) \approx \sigma_S(\lambda_1)$.

Eine sinnvolle Randbedingung ist, daß die beiden Wellenlängen nahe beieinander liegen. Die Wellenlängenabhängigkeit der Streuprozesse (λ^{-4} bei Rayleighstreuung, näherungsweise λ^{-1} bei Aerosolstreuung) ist nämlich - verglichen mit dem Verhalten des Absorptionswirkungsquerschnitts sehr vieler Substanzen - nur gering; das bedeutet, daß $\sigma(\lambda_2) \approx \sigma(\lambda_1)$ und daher ist:

$$\Delta\sigma_R = \sigma_R(\lambda_1) - \sigma_R(\lambda_2) \ll \sigma_R(\lambda_1)$$

$$\Delta\sigma_M = \sigma_M(\lambda_1) - \sigma_M(\lambda_2) \ll \sigma_M(\lambda_1)$$

Die Verwendung von zwei Wellenlängen ermöglicht es, nur diese Differenzen in die Berechnung der Konzentration der interessierenden Spurensubstanz (Gl. (9) und (10)) eingehen zu lassen. Durch diese Differenzbildung wird die Bedeutung der Streuprozesse für die Genauigkeit bei der Bestimmung der Konzentration reduziert. Bildet man nämlich jetzt das Verhältnis Q aus den beiden Quotienten $q(R_1, R_2, \lambda)$ (siehe Gl. (8)) für beide Wellenlängen, so gilt:

$$Q(R_1, R_2) = \frac{M(R_1, \lambda_1) \cdot M(R_2, \lambda_2)}{M(R_1, \lambda_2) \cdot M(R_2, \lambda_1)} = \frac{\beta_{11} \cdot \beta_{22} \cdot T^2(R_1, R_2, \lambda_1)}{\beta_{12} \cdot \beta_{21} \cdot T^2(R_1, R_2, \lambda_2)}$$

$$= \frac{\beta_{11} \cdot \beta_{22}}{\beta_{12} \cdot \beta_{21}} \cdot \exp\left\{-2 \int_{R_1}^{R_2} (N_R \Delta\sigma_R + N_M \Delta\sigma_M + N_S \Delta\sigma_S) dr\right\}$$

$$\approx \frac{\beta_{11} \cdot \beta_{22}}{\beta_{12} \cdot \beta_{21}} \cdot \exp\left\{-2\Delta R \cdot (N_R(R_{12}) \Delta\sigma_R + N_M(R_{12}) \Delta\sigma_M + N_S(R_{12}) \Delta\sigma_S)\right\}$$

(9)

Hierbei sind folgende Abkürzungen verwendet:

$$\Delta R = R_1 - R_2$$

$$\beta_{ij} = \beta_R(R_i, \lambda_j) + \beta_M(R_i, \lambda_j)$$

Bezeichnet man mit R_{12} einen Punkt aus dem Intervall $[R_1, R_2]$, so ist außerdem nach dem Mittelwertsatz der Integralrechnung

$$N(R_{12}) = 1/\Delta R \cdot \int_{R_1}^{R_2} N(r) dr$$

Gl. (9) lässt sich nach der mittleren Konzentration $N_S(R_{12})$ der Spurensubstanz im Intervall $[R_1, R_2]$ auflösen:

$$N_S(R_{12}) = \frac{1}{2 \cdot \Delta \sigma_S \cdot \Delta R} \cdot \left\{ \ln \frac{M(R_1, \lambda_1) \cdot M(R_2, \lambda_2)}{M(R_1, \lambda_2) \cdot M(R_2, \lambda_1)} + \right. \\ \left. \ln \frac{\beta_{11} \cdot \beta_{22}}{\beta_{12} \cdot \beta_{21}} + [- 2 \cdot \Delta R \cdot (N_R(R_{12}) \cdot \Delta \sigma_R + N_M(R_{12}) \cdot \Delta \sigma_M)] \right\}$$

Zur Vereinfachung setzt man

$$B(R_{12}) = \ln \frac{\beta_{11} \cdot \beta_{22}}{\beta_{12} \cdot \beta_{21}} \quad (10a)$$

$$A(R_{12}) = [- 2 \cdot \Delta R \cdot (N_R(R_{12}) \cdot \Delta \sigma_R + N_M(R_{12}) \cdot \Delta \sigma_M)] \quad (10b)$$

$B(R_{12})$ ist der differentielle Rückstreuterm, $A(R_{12})$ der differentielle Extinktionsterm. Damit erhält man:

$$N_S(R_{12}) = \frac{1}{2 \cdot \Delta \sigma_S \cdot \Delta R} \left\{ \ln \frac{M(R_1, \lambda_1) \cdot M(R_2, \lambda_2)}{M(R_1, \lambda_2) \cdot M(R_2, \lambda_1)} + A(R_{12}) + B(R_{12}) \right\} \quad (10)$$

Man sieht, daß ein unberechtigtes Vernachlässigen der beiden Korrekturterme also die Konzentration der Spurensubstanz um den Betrag

$$N_S^{AB} = N_S^A + N_S^B = \frac{A(R_{12}) + B(R_{12})}{2 \cdot \Delta \sigma_S \cdot \Delta R} \quad (10c)$$

verfälschen würde.

In der Praxis leitet sich eine Berechtigung zur Vernachlässigung dieser beiden Terme häufig aus der Tatsache ab, daß die Differenz

der beiden verwendeten Wellenlängen äußerst klein ist. Dies gilt insbesondere dann, wenn der zu untersuchende Stoff ein ausgeprägtes Linienspektrum aufweist.

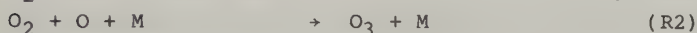
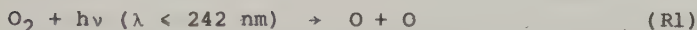
In diesem Idealfall ist daher zur Ermittlung der Konzentration der zu messenden Substanz neben den Rückstreusignalen nur noch die Kenntnis des Absorptionswirkungsquerschnitts erforderlich. Die Entfernungen R_1 und R_2 lassen sich aus der Laufzeit der rückgestreuten Photonen ableiten.

Im Weiteren soll gezeigt werden, daß sich diese Technik auch für die Messung der stratosphärischen Ozonkonzentration anwenden läßt.

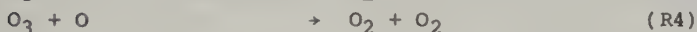
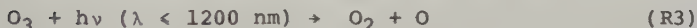
2. Das Ozonproblem

Ozon (O_3) ist die instabile dreiatomige Abart des molekularen Sauerstoffs. Seine maximale Konzentration (typisch $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ oder $5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$) wird in etwa 20 - 25 km Höhe beobachtet, das Mischungsverhältnis erreicht den höchsten Wert (etwa 10 ppmv) zwischen 30 und 40 km Höhe.

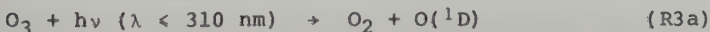
Das Ozonkonzentrationsprofil ist durch ein dynamisches Gleichgewicht zwischen Bildungs- und Zerstörungsmechanismen bestimmt. Eine ausführliche Darstellung wird z.B. in /21,22/ gegeben. Die Ozonbildung erfolgt dabei über die Photolyse des Sauerstoffs durch UV-Licht:



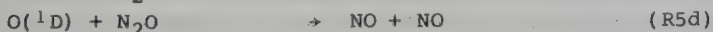
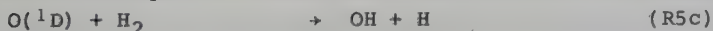
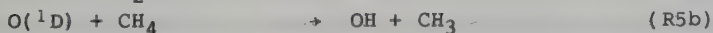
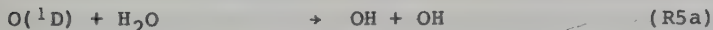
Hierbei ist M ein beliebiges Molekül, das für einen Dreierstoß benötigt wird. Diesem Produktionsmechanismus steht ein ähnlich ablaufender Zerstörungsmechanismus gegenüber:



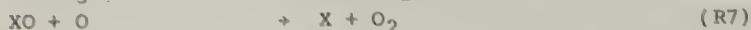
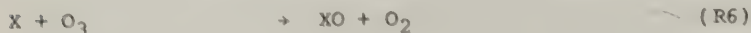
Das atmosphärische Ozonprofil entspricht jedoch nur in sehr grober Näherung gerade dem Gleichgewicht dieser vier Reaktionen. Bei der Photolyse des Ozons durch energiereiches UV-Licht wird nämlich angeregter atomarer Sauerstoff $O(^1D)$ erzeugt, der indirekt für die Ozonschicht von größter Wichtigkeit ist:



Durch die Reaktion von $O(^1D)$ mit atmosphärischen Spurengasen, z.B.:



werden die äußerst reaktiven Radikale NO, Cl, H und OH gebildet, die ihrerseits durch katalytische Prozesse Ozon abbauen (R steht für ein Restmolekül). Bezeichnet man diese Radikale mit X, so erfolgt die Abbaureaktion gemäß:



Das atmosphärische Ozonprofil läßt sich mit diesen zusätzlichen natürlichen Abbaureaktionen gut erklären. Seit einiger Zeit wird jedoch eine Zunahme der atmosphärischen Konzentration dieser Radikale (hauptsächlich gilt dies für NO und Cl) durch anthropogene Aktivitäten diskutiert. Im Fall der Stickoxide sind mögliche Quellen die Abgase von Überschallflugzeugen und die hohe Produktionsrate von Stickstoffdünger. Im Fall des Chlors ist es der hohe industrielle Ausstoß an Chlorkohlenwasserstoffen, die vielseitig Verwendung finden.

Diese Stoffe diffundieren im Laufe von Jahrzehnten langsam in die Stratosphäre, wo durch die kurzweilige Sonneneinstrahlung die Radikale NO und Cl freigesetzt werden. Der Ozonabbau erfolgt dann wieder über die Reaktionskette R6 - R7.

Erste Modellrechnungen kamen zu alarmierenden Ergebnissen (s. z.B. /4,23/). Sie prognostizierten einen letztendlichen Abbau des Gesamtozons zwischen 5 und 20 Prozent.

Infolge seiner starken Absorption im nahen UV (250 - 350 nm) ist Ozon von großer Bedeutung für das Leben auf der Erde. Eine Zunahme der UV-Einstrahlung würde beim Menschen das Immunsystem schwächen und das Hautkrebsrisiko erhöhen. Aber auch die Tier- und Pflanzenwelt würde geschädigt /22,24/.

Bei der zunehmend verfeinerten Analyse des Problems sind in die Modellrechnungen jetzt auch Rückkopplungen zwischen den verschiedenen katalytischen Reaktionszyklen eingeschlossen, die zum Teil auch smogähnliche Ozonbildungsreaktionen zulassen. Auch die Temperaturabhängigkeit verschiedener beteiligter Reaktionen findet inzwischen Berücksichtigung. Daher spielt also auch die stetige

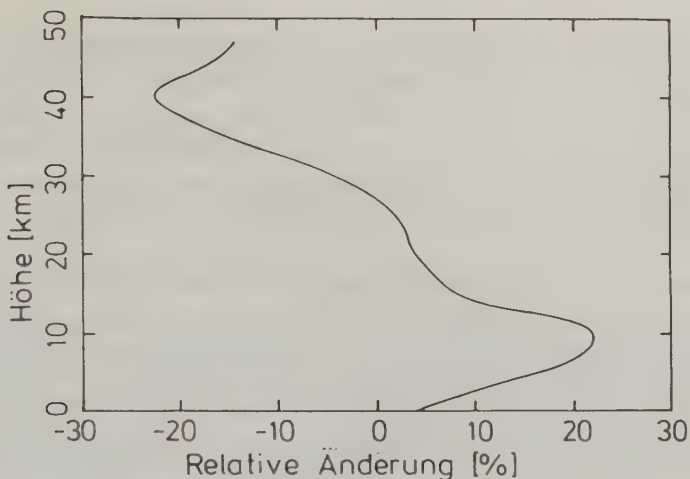


Abb. 1: Prognostizierte Änderung des Ozonvertikalprofils als Funktion der Höhe infolge der Einwirkung verschiedener anthropogener Spurenstoffe. Das Erreichen des hier gezeigten Gleichgewichtszustands sollte unter der Annahme einer konstanten Produktionsrate von Chlorkohlenwasserstoffen auf der Basis des Jahres 1975 etwa in der Mitte des nächsten Jahrhunderts erreicht werden (nach /8/).

Zunahme des CO_2 -Gehalts seit Beginn der Industrialisierung und die damit verknüpfte Erwärmung der Atmosphäre bei der Ozonproblematik eine Rolle.

Schließt man all diese Effekte mit ein, findet sich ein differenzierteres Bild /8,25/: die Ozonkonzentration in Höhen um 40 km wird sich nach den Voraussagen der Modellrechnungen im Lauf der nächsten Jahrzehnte um bis zu 20 % verringern. Dagegen wird für den Bereich der Troposphäre und unteren Stratosphäre (unterhalb 25 km) eine Zunahme des Ozongehalts erwartet. Schematisch ist dieser Sachverhalt in Abb. 1 dargestellt (nach /8/).

Zusammengenommen würde dies bedeuten, daß der Gesamtozongehalt sich insgesamt nur unbedeutend ändert. Vielmehr ist jetzt das wichtigste Ergebnis der Modelle die Verlagerung des Schwerpunkts des Ozonprofils zu niedrigeren Höhen hin. Damit ist jedoch eine Änderung des stratosphärischen Temperaturverlaufs verbunden. Dieser ist durch die Dissipation der vom Ozon absorbierten UV-Strahlung an das Ozon

gekoppelt. Indirekt angebunden ist dann auch die dem Temperaturgradienten folgende stratosphärische Zirkulation. All diese Faktoren zusammengekommen werden mit Sicherheit auf die klimatischen Verhältnisse auf der Erde Einfluß nehmen. Doch entziehen sich derart komplexe Vorgänge bisher noch einer detaillierten Berechnung (eine Übersicht über diese Problematik findet sich in /22/).

Diese Modelle und ihre Vorhersagen sind zwar sicherlich qualitativ richtig, trotzdem sind quantitative Korrekturen durchaus noch zu erwarten. Eine detaillierte Auseinandersetzung mit dieser Problematik würde jedoch an dieser Stelle zu weit führen.

Ein Nachweis der in Abb. 1 skizzierten Veränderungen steht allerdings bis heute aus. Dies liegt zum Teil an der Kleinheit der Effekte (Abb. 1 stellt den Gleichgewichtszustand dar, der erst in der Mitte des nächsten Jahrhunderts erreicht werden wird), zum Teil an der hohen natürlichen Fluktuation der Ozonkonzentration /26-28/. Im Fall des Ozonabbaus in einer Höhe um 40 km stand bisher auch kein geeignetes Meßverfahren zur Verfügung (vgl. Einleitung). Nur kontinuierliche Messungen über einen längeren Zeitraum hinweg geben die Möglichkeit, den Einfluß anthropogener Effekte herauszufiltern.

3. Die Anwendung der DIAL-Technik für Ozonmessungen

3.1. Wahl des Meßbereichs

Eine Lidarmessung in der oberen Stratosphäre erfordert eine sehr leistungsstarke Laserquelle, wobei der Wellenlängenbereich durch die Ozonabsorptionsbanden vorgegeben wird.

Denkbar wäre grundsätzlich eine Messung im Infraroten (IR) unter Ausnützung der starken $9.57 \mu\text{m}$ -Linie des Ozons /29/. Weiterhin stehen Absorptionsbanden im Sichtbaren, die Chappuis-Banden (450 - 750 nm) und im Ultraviolett (UV), die Hartley-Huggins-Banden (220 - 350 nm), zur Verfügung /30/.

Da in der oberen Stratosphäre Aerosole praktisch nicht mehr nachweisbar sind, bleibt als einziger Rückstreuprozeß die Rayleighstreuung. Bereits der Vergleich der Rückstreuoeffizienten (Gl.(1) und (2)) im IR ($10 \mu\text{m}$) und UV ($0.3 \mu\text{m}$) zeigt, wie wenig vorteilhaft aufgrund des λ^{-4} -Gesetzes der Rayleighstreuung eine Messung im IR wäre:

$$\beta(10 \mu\text{m})/\beta(0.3 \mu\text{m}) = (0.3/10)^4 = 8 \cdot 10^{-7}$$

Die zu erwartende Rückstreuintensität wäre also im IR um viele Zehnerpotenzen geringer und damit die statistische Genauigkeit der Messung wesentlich schlechter (siehe Kap. 4.2.).

Der zur Verfügung stehende Spielraum für Messungen im Sichtbaren und UV soll jetzt für eine Höhe von 30 km diskutiert werden. Als Beurteilungskriterien dienen die Schwächung des Laserstrahls beim Durchgang durch die Ozonschicht und die erreichbare untere Nachweisgrenze bei der Bestimmung der Ozonkonzentration.

Ein repräsentativer Absorptionswirkungsquerschnitt im Sichtbaren ist $\sigma_{\text{O}_3}(602 \text{ nm}) = 4 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$; im UV fallen in den Bereich der Absorptionsbande die beiden leistungsstarken Excimerlaser KrF ($\sigma_{\text{O}_3}(248 \text{ nm}) = 1.1 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$) und XeCl ($\sigma_{\text{O}_3}(308 \text{ nm}) = 1.3 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$).

Die jeweilige Schwächung des Rückstreusignals allein durch Ozon nach Gl. (3) und (7) ist dann grob geschätzt bei einer mittleren Ozonkonzentration von etwa $2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ bis in Höhen von $R = 30 \text{ km}$:

$$T^2(602 \text{ nm}) = \exp(-2 \cdot N_{\text{O}_3} \cdot R \cdot \sigma_{\text{O}_3}(602)) = \exp(-0.05) = 0.95$$

$$T^2(308 \text{ nm}) = \exp(-2 \cdot N_{\text{O}_3} \cdot R \cdot \sigma_{\text{O}_3}(308)) = \exp(-1.6) = 0.2$$

$$T^2(248 \text{ nm}) = \exp(-2 \cdot N_{\text{O}_3} \cdot R \cdot \sigma_{\text{O}_3}(248)) = \exp(-132) = 5 \cdot 10^{-58} (!)$$

Vergleicht man diese Abschätzung mit der ursprünglich emittierten Photonenzahl (typischer Wert 10^{17} Photonen/Schuß) wird klar, daß die Strahlung eines KrF-Lasers zu stark absorbiert wird, also für Messungen in der oberen Stratosphäre völlig ungeeignet ist. Daß andererseits gerade der XeCl-Laser für diese Aufgabe geeignet ist, erkennt man an einer groben Abschätzung der unteren Nachweisgrenze N_{min} . Es ist näherungsweise wegen Gl. (9) und Gl. (10):

$$N_{\text{min}} = (\ln Q_{\text{min}}) / (2 \cdot \sigma_{\text{O}_3} \cdot \Delta R)$$

Eine Richtzahl für den kleinsten noch meßbaren Wert von $\ln Q$ ist $\ln Q_{\text{min}} = 0.02 / 17$. Mit einer Höhenauflösung von $\Delta R = 3 \text{ km}$ in 30 km Höhe ist dann

$$N_{\text{min}}(602 \text{ nm}) = 8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$$

$$N_{\text{min}}(308 \text{ nm}) = 2 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$$

Die tatsächlich vorhandene Ozonkonzentration in 30 km Höhe ist jedoch etwa $2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. Sie ist mit DIAL im Sichtbaren also nicht meßbar. Bei Verwendung eines XeCl-Lasers kann andererseits bereits mit dieser groben Abschätzung eine Genauigkeit von 10% erwartet werden.

Diese Diskussion macht deutlich, daß

- 1) bei Messungen mit der DIAL-Technik die Absorption der interessierenden Substanz weder zu stark (wegen der dann begrenzten Reichweite) noch zu schwach (wegen der dann höheren Nachweisgrenze) sein darf.

2) der XeCl-Laser für Ozonmessungen in der oberen Stratosphäre hervorragend geeignet ist. Darüberhinaus zeigt diese Abschätzung der minimalen nachweisbaren Konzentration, daß auch ein Farbstofflasersystem (bei dem die Wellenlänge abstimmbar ist) gerade im Bereich um 300 nm arbeiten müßte; allerdings wäre die dann zur Verfügung stehende Pulsenergie deutlich geringer.

Die Eignung des XeCl-Lasers scheint trotzdem zunächst in Frage gestellt zu sein, da es sich dabei um einen nicht abstimmbaren Laser handelt. Deshalb müßten die in Kap. 2 angedeuteten Schwierigkeiten beim Betrieb eines Absorptionslidars ohne Referenzwellenlänge in Kauf genommen werden. Wie dieses Problem gelöst werden kann, so daß daraus sogar ein Vorteil erwächst, soll im nächsten Kapitel dargelegt werden.

3.2. Erzeugung der Referenzwellenlänge durch stimulierte Raman-Streuung

Eine einfache Möglichkeit, mit einem einzigen Laser fester Frequenz eine zusätzliche - in der Frequenz etwas verschobene - Strahlung zu erzeugen, ist die stimulierte Raman-Streuung. Es soll jedoch an dieser Stelle auf eine ausführliche Darstellung verzichtet werden; nur die wesentlichen, zum Verständnis der Apparatur erforderlichen Grundzüge sollen erläutert werden (siehe z. B. /1/).

3.2.1. Grundzüge der stimulierten Raman-Streuung

Die stimulierte Raman-Streuung ist ein nichtlinearer Prozess. Für ihr Auftreten ist daher eine sehr hohe Photonendichte notwendig wie sie erst seit der Erfindung des Lasers zur Verfügung steht. Im Gegensatz zum spontanen Raman-Effekt, bei dem die Lichtstreuung an verschiedenen Schwingungsmoden eines molekularen Gases und in den vollen Raumwinkel erfolgt, ist der stimulierte Raman-Effekt dadurch ausgezeichnet, daß nur die am leichtesten anregbare Vibra-

tionsmode verstärkt wird. Des weiteren ist die Streuung jetzt gerichtet, d.h. sie erfolgt entlang des einfallenden Strahles. Wie beim spontanen Raman-Effekt ist sowohl eine Verschiebung zu längeren (Stokes-Linien) als auch zu kürzeren Wellenlängen (Antistokes-Linien) hin möglich.

Das Anwachsen der Intensität der Raman-verschobenen Linie in einer Wechselwirkungszone der Länge z läßt sich mit Hilfe eines Verstärkungskoeffizienten g beschreiben /31,32/:

$$I_S(z) = I_{SO} \cdot \frac{\exp(g I_{PO} z)}{1 + \frac{\omega_p J_{SO}}{\omega_s J_{PO}} \exp(g I_{PO} z)} \quad (11)$$

wobei I_{PO} die anfängliche Pumpintensität und I_{SO} die anfängliche Intensität der ersten Stokes-Linie bezeichnet. Letztere soll hier nur von spontaner Raman-Streuung herrühren. ω_p und ω_s sind die Frequenzen des Pumplasers und der ersten Stokes-Linie. Aus Gl. (11) läßt sich direkt ersehen, daß für sehr kleine z die Stokes-Intensität exponentiell anwächst:

$$I_S(z) = I_{SO} \cdot \exp(g \cdot I_{PO} \cdot z) \quad (12)$$

Für sehr große z wird Sättigung erreicht:

$$I_S(z) = (\omega_s / \omega_p) \cdot I_{PO} \quad (13)$$

Im Prinzip ließe sich nach Gl. (11) die gesamte Pumpintensität in die erste Stokeslinie konvertieren. Tatsächlich wird jedoch die wachsende Intensität der ersten Stokeslinie wiederum zum Ausgangspunkt für die Erzeugung der zweiten Stokeslinie usw.

Die Intensitätsvariation entlang des einfallenden Pumpstrahlquerschnitts führt in der Praxis dazu, daß mehrere Stokesordnungen gleichzeitig auftreten. Außerdem können auch durch parametrische Vierwellenmischprozesse Stokes- und Antistokeslinien erzeugt werden. Dabei ist aus Gründen der Impulserhaltung eine Phasenanpassung erforderlich, was den bekannten ringförmigen Strahlquerschnitt von Antistokes- und höheren Stokeslinien erklärt.

Der Verstärkungskoeffizient läßt sich nach /31-33/ wie folgt charakterisieren:

$$g = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) \frac{2 \cdot N \cdot c^2 \cdot (P_a - P_b)}{\pi \cdot h \cdot \nu_p \cdot \nu_s^2 \cdot n^2(\nu_s) \cdot P_a \cdot \Delta\nu} \quad (14)$$

$d\sigma/d\Omega$ = differentieller Raman-Streuquerschnitt in Vorwärtsrichtung

N = Moleküldichte des Gases in der Raman-Zelle

P_a = Besetzung des Grundzustands

P_b = Besetzung des ersten angeregten Schwingungszustands

c = Lichtgeschwindigkeit

ν_p = Frequenz der Pumpaserlinie

$\Delta\nu$ = Raman-Linienbreite

ν_s = Frequenz der Stokes-Linie

n = Brechungsindex des Gases in der Raman-Zelle

Diese Formeln sollen einen Eindruck davon vermitteln, welche Parameter die Konversion der Pumpintensität beeinflussen. Am leichtesten läßt sich die Dichteabhängigkeit des Verstärkungskoeffizienten ausnützen, indem man den Druck in der Raman-Zelle variiert. Durch unterschiedliche Fokussierung des Lasers in die Zelle läßt sich zudem die effektive Pumpintensität regulieren (Gl. (11)-(14) müssen dann entsprechend modifiziert werden /33/).

3.2.2. Stimulierte Raman-Streuung in H_2 , D_2 und CH_4

Um Probleme, wie sie im Zusammenhang mit der Benützung von Flüssigkeiten als Raman-Medien auftreten können, von vorneherein zu vermeiden, wurden als Raman-Medien nur die einfach zu handhabenden Gase Wasserstoff (H_2 und D_2) und Methan (CH_4) erprobt. Sie zeichnen sich vor anderen Gasen durch einen hohen Verstärkungskoeffizienten aus, so daß bereits moderate Arbeitsdrücke (s.u.) für eine sinnvolle Konversionsrate ausreichen sollten. Die benötigte Konversionsrate läßt sich aus der in Kap. 3.1. durchgeführten Ab-

schätzung der vom Ozon verursachten Extinktion bei 308 nm ($T^2 = 0.2$) sofort ableiten. Da die Referenzlinie dieser Schwächung auf 20 % nicht unterliegt (s.u.), genügt für Messungen in 30 km Höhe folglich gerade eine Konversionsrate von etwa 20 %. Weil die Messungen sich sogar auf noch größere Höhen erstrecken sollen, wobei die Laserwellenlänge relativ zur Referenzwellenlänge noch weiter geschwächt wird, sollte insgesamt sogar eine Konversionsrate von rund 10 - 15 % ausreichen. Abb. 2 zeigt Messungen der Druckabhängigkeit der Konversion. Man sieht, daß mit H_2 diese Konversionsrate von 10 - 15 % leicht erzielbar ist. Mit CH_4 kann sie dann erreicht werden, wenn der Druck genügend hoch gewählt wird.

Neben dem Druck in der Raman-Zelle spielt auch die Brennweite der fokussierenden Linse eine wichtige Rolle, da sie die effektive Intensität im Fokus bestimmt. Ist die Brennweite sehr lang, so ist die Konversion des Pumplichtes wegen der geringen Photonendichte in Fokalnähe klein. Ist jedoch die Brennweite sehr kurz, so ist die Photonendichte so hoch, daß bereits eine effektive Umsetzung in höhere Stokes-Ordnungen erfolgt. Daher wurden Versuche mit unterschiedlichen Brennweiten durchgeführt, um ein Maximum der Konversion in Methan erzielen zu können. Es ergab sich ein Optimum der Konversion in die erste Stokeslinie bei einer Brennweite von knapp über einem Meter (Abb. 3). Infolgedessen wurde bei den Ozonmessungen eine kommerziell angebotene Linse mit $f = 1.1$ m (Fa. Kontron, Eching) verwendet. Bei dieser Brennweite kann der Anteil der höheren Stokeslinien an der Gesamtintensität beim Austritt aus der Raman-Zelle auf wenige Prozent begrenzt werden.

Die Eigenschaften der verwendeten Raman-Gase sind in Tab. 1 zusammengefaßt. Die absolute Wellenlänge der Raman-Verschiebung bezieht sich auf den Betrieb mit einem XeCl-Laser (308.0 nm).

Im Hinblick auf eine möglichst geringe Wellenlängendifferenz zwischen Absorptions- und Referenzwellenlänge scheint gemäß Tab. 1 zunächst CH_4 aufgrund seiner geringen Raman-Verschiebung für den Einsatz bei Lidarmessungen am besten geeignet. Gleichzeitig ist auch die Verstärkung relativ hoch. Es hat sich jedoch im Dauerbetrieb gezeigt, daß CH_4 mittels Zwei-Photonen-Absorption photo-

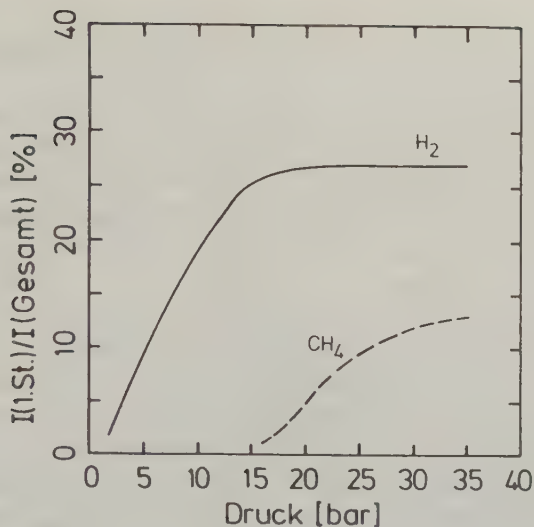


Abb. 2: Konversion in die erste Stokes-Linie in Abhängigkeit vom Druck in der Ramanzelle für Wasserstoff und Methan

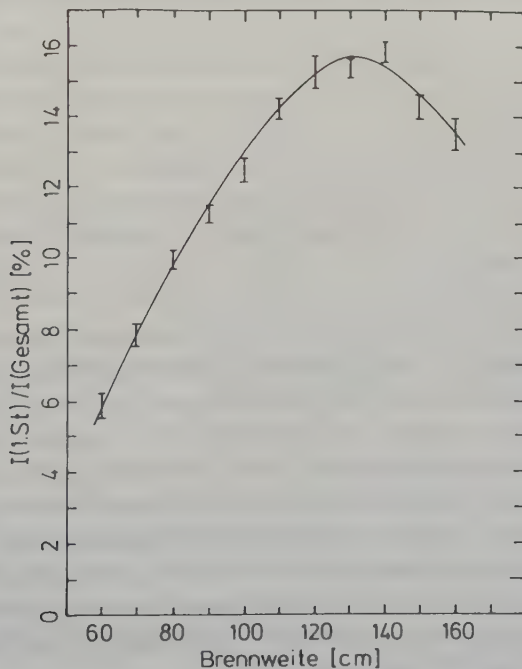


Abb. 3: Konversion in die erste Stokes-Linie in Abhängigkeit von der Fokallänge bei einem Druck von 34 bar CH₄ in der Ramanzelle

Tab. 1: Wichtige Parameter der drei untersuchten Raman-Gase.

Gas	Raman-Verschiebung (cm^{-1}) / (nm)		Arbeits- Druck (bar)	Verstärkungs- koeffizient (10^{-11}cm/W) ⁺
CH ₄	2916	338.4	35	320
D ₂	2991	339.2	(30) ⁺⁺	90
H ₂	4155	353.2	8	450

⁺ bei 308 nm, nach /33-34/ abgeschätzt

⁺⁺ mit verbesserter Strahldivergenz (vgl. Kap. 4.3.)

lysiert wird und sich Kohlenstoff an den Fenstern der Raman-Zelle niederschlägt. Daraus resultiert eine schnelle Abnahme der effektiven Laserleistung, der nur durch eine ständige Versetzung der Raman-Zelle relativ zum Laserstrahl begegnet werden kann.

In der Praxis hat sich daher H₂ wesentlich besser bewährt. Der Betrieb mit H₂ (und auch D₂) ist hinsichtlich des Problems der Fensterverschmutzung völlig unkritisch. Der Verstärkungskoeffizient ist zudem nach Tab. 1 bei H₂ am höchsten und der verwendete Arbeitsdruck am niedrigsten. Insgesamt ist daher der Betrieb mit H₂ vorzuziehen. Fast alle Ozonmessungen wurden daher mit diesem Gas durchgeführt.

Versuche mit D₂ wurden bis zu einem Arbeitsdruck von 50 bar durchgeführt. Die Konversion in die erste Stokeslinie überstieg dabei aufgrund des geringen Verstärkungskoeffizienten (vgl. Tab. 1) zunächst nie die 2% - Marke. Das ist jedoch für genaue Messungen in der oberen Stratosphäre zu wenig. Beim weiteren Ausbau der Apparatur wurde im Juli 1984 auch die Strahldivergenz des Lasers verbessert (siehe Kap. 4.3.), und damit die Pumpintensität im Fokus der Raman-Zelle erhöht. Dies führt gemäß Gl. (12) zu einer Erhöhung der Konversion, so daß jetzt trotz des niedrigen Verstärkungskoeffizienten ein Arbeitsdruck von 30 bar D₂ für eine befriedigende Konversion ausreicht.

3.3. Beschreibung der Apparatur

Die Erzeugung der Referenzwellenlänge durch die Technik der stimulierten Raman-Streuung gestattet es, einen sehr einfachen und daher wenig stör anfälligen Aufbau der Apparatur zu wählen. Sendesystem und Nachweisystem sind dabei in einem einzigen Container von 2×3 qm Grundfläche untergebracht.

Als Transmitter dient ein kommerzieller XeCl-Excimerlaser der Fa. Lambda Physik (BMG 1028). Er wird mit einer Mischung aus 80 mbar He/5% HCl, 50 mbar Xe und 1.2 bar Ar betrieben. Die Laserstrahlung ist unpolarisiert. Ein instabiler Resonator, bestehend aus einem Konkavspiegel mit Krümmungsradius $R = 2490$ mm und einer konvergenz Auskoppellinse mit $R = 500$ mm (4.9 fache Aufweitung) erzeugt eine Strahldivergenz von 1 mrad (Über den Einbau eines anderen Resonators siehe Kap. 4.3.). Die Laserpulse haben 15 ns Dauer und sind damit so kurz, daß die Ortsauflösung allein durch die Schaltzeit der Nachweiselektronik bestimmt wird. Das Emissionsspektrum des XeCl-Lasers besteht im wesentlichen aus zwei Linien, die den Vibrationsübergängen $B(1)-X(1)$ (0,1) und $(0,2)$ bei 307.9 bzw. 308.2 nm entsprechen; die volle Bandbreite der Emission entspricht etwa 0.6 nm /11,35/.

Die maximal erreichbare Repetitionsrate ist 100 Hz bei einer Pulsenenergie bis zu 150 mJ. Der XeCl-Laser hat von allen Excimerlasern die besten Dauernetriebs-eigenschaften. Mehr als 10^7 Pulse können emittiert werden bis ein Anfall auf 50 % der Anfangsenergie eingetreten ist, hervorgerufen durch die Verschmutzung der Resonatorfenster. Dieses günstige Langzeitverhalten wird durch ein elektrostatisches Filter für die Reinigung des Betriebsgases erreicht.

Ein Schema des Sendesystems zeigt der rechte Teil von Abb. 4. Die Laserstrahlung wird über eine 1.1 m - Linse in die Raman-Zelle fokussiert. Dadurch wird die Referenzstrahlung simultan und kollinear erzeugt. Nach dem Passieren eines räumlichen Filters und einer Strahlaufweitungs-optik werden die beiden Strahlen senkrecht in die Atmosphäre emittiert.

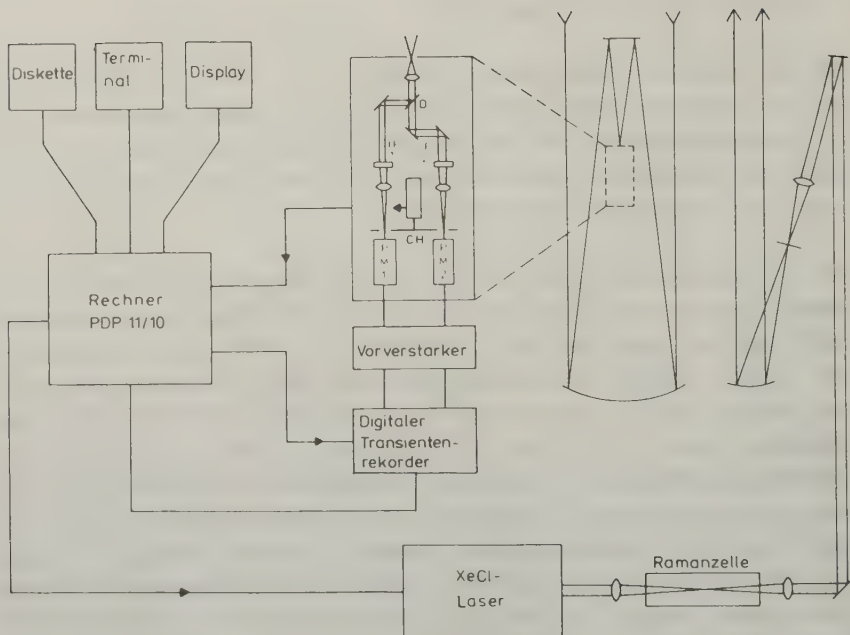


Abb. 4: Schemazeichnung der Lidarapparatur. Das Sendesystem ist rechts, das Nachweissystem links eingezeichnet (der Detektorblock ist zusätzlich in der Mitte vergrößert eingezeichnet). Die Pfeile symbolisieren den Zeitablauf der Triggierung.
D = Dichroitisches Filter, CH = Chopper, IF = Interferenzfilter, PM = Photomultiplier

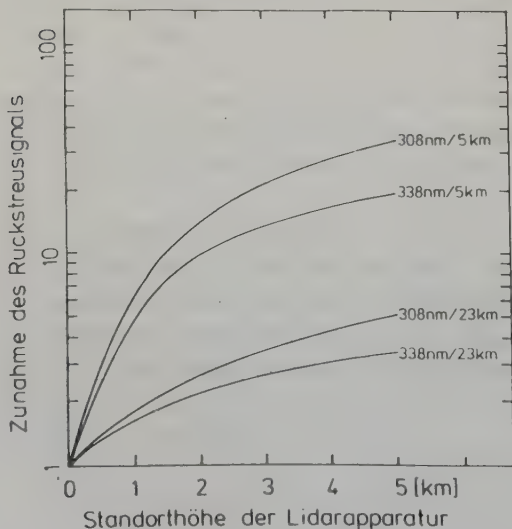


Abb. 5: Zunahme des Rückstreusignals in Abhängigkeit von der Standorthöhe der Lidarapparatur (bezogen auf Meeresniveau) für unterschiedliche Sichtverhältnisse in Bodennähe

Das Nachweissystem zeigt der linke Teil von Abb. 4. Als Empfangsspiegel dient ein aluminiumbedampfter Konkavspiegel von 62 cm Durchmesser und 2.4 m Brennweite. Er fokussiert das rückgestreute Licht über einen Umlenkspiegel auf die Gesichtsfeldblende des Detektorsystems.

Die Detektoren einschließlich der vorgeschalteten Optik (in der Mitte von Abb. 4 vergrößert eingezeichnet) sind in einem massiven Aluminiumblock untergebracht. Damit läßt sich die Justierung der Nachweisspektik auch über längere Zeiträume hinweg erhalten. Andererseits sichert diese Bauweise den Schutz der empfindlichen optischen Komponenten vor Witterungseinflüssen.

Die beiden Wellenlängen werden im Detektorblock zunächst durch einen dichroitischen Strahlteiler (Kantenfilter) der Fa. Laser-optik (Garbsen) nahezu verlustlos getrennt, wobei die Referenzlinie reflektiert und die Laserlinie transmittiert wird. Beide Linien werden über Umlenkspiegel auf schmalbandige Interferenzfilter (6 nm FWHM bei der Laserlinie, 10 nm FWHM bei der Referenzlinie) der Fa. Balzers (Geisenheim) gelenkt, die den Strahlungshintergrund bei Nacht eindämmen.

Zwei Linsen fokussieren das Licht beider Wellenlängen auf zwei rauscharme Photomultiplier (EMI 9893 QA, Fa. Dörr, Stuttgart) mit etwa 5 Hz Dunkelzählrate. Über einen Vorverstärker wird ein schneller digitaler Transientenrekorder mit einer Kanalstandzeit von 1.3 μ s angesteuert. Dies entspricht einer Ortsauflösung von 200 m. Nach Aufsummierung von jeweils 512 Laserschüssen werden die Daten an einen Kleinrechner (PDP 11/10) weitergegeben und auf 8"-Disketten gespeichert. Mit einer vereinfachten Auswerteroutine kann die Ozonkonzentration zur Kontrolle sofort näherungsweise bestimmt werden und zusammen mit den Rückstreuungssignalen auf einem Bildschirm dargestellt werden. Die endgültige Auswertung erfolgte jedoch auf einer größeren PDP 11/40-Anlage in Garching.

Erste Probemessungen wurden zunächst noch in Garching durchgeführt. Dieser Standort ist jedoch für Messungen bis in große Höhen wenig geeignet, weil die hohe Luftdichte und vor allem die starke Aerosolkonzentration gerade der bodennahen Schicht (verstärkt durch

Tab. 2: Technische Daten des Lidarsystems

Sendesystem		Empfangssystem	
Laserwellenlänge	308 nm	Empfangsspiegel $r = 31$ cm	
		$f = 240$ cm	
Pulsenergie	150 mJ	Gesichtsfeld	0.8 mrad
max. Rep.rate	100 Hz	Photomultiplier	EMI 9893 QA
Referenzwellenlänge	338 nm (CH_4)	Dunkelzählrate	5 Hz
	353 nm (H_2)		
Konversion in die erste Stokeslinie	10 - 15 %	Transientenrekorder	512 Kanäle
Aussendespiegel	$r = 10$ cm	Kanalstandzeit	1.3 μs
	$f = 100$ cm		
Sendedivergenz	0.4 mrad	Rechner	PDP 11/10

die Großstadtnähe) das Signal bereits entscheidend abschwächt. In Abb. 5 ist für unterschiedliche Sichtverhältnisse in Bodennähe der Gewinn an Rückstreusignal aus der Stratosphäre als Funktion der Standorthöhe der Apparatur (bezogen auf Meeresniveau) dargestellt. Nimmt man beispielsweise als Standort einen Berggipfel mit 3 km Höhe an, so ergibt sich bei mäßigen Sichtverhältnissen in Bodennähe (23 km Sichtweite) eine Zunahme des Rückstreusignals um etwa einen Faktor drei. Bei noch schlechteren Sichtverhältnissen (5 km Sichtweite) kann sogar ein Faktor 15 gewonnen werden. Da die Meßgenauigkeit in großen Höhen durch die Photonenstatistik bestimmt wird (vgl. Kap. 4.6.), wirkt sich bei ungünstigen Sichtverhältnissen die Standorthöhe der Lidarapparatur entscheidend auf die Meßgenauigkeit aus.

Die Beobachtungsplattform des Max-Planck-Instituts für extraterrestrische Physik (Garching) auf der Zugspitze (2964 m) bot sich daher als gut geeigneter Standort an. Durch das Entgegenkommen

dieses Instituts war es möglich, diesen Wunsch zu realisieren. Mit einem Hubschrauber der Bundeswehr wurde die Apparatur im September 1982 auf den Zugspitzgipfel transportiert.

Um eine optimale Stabilität der optischen Komponenten zu gewährleisten sind einerseits der Laser einschließlich Gasversorgung und Raman-Zelle (Abb. 6), andererseits auch der Sende- und Empfangsspiegel und die Detektoreinheit (Abb. 7) auf stabilen Eisenrohrgestellen montiert, welche nicht auf dem Containerfußboden, sondern direkt auf dem Felsgestein des Untergrunds fixiert sind. Diese Vorkehrung sichert eine außerordentliche Stabilität der Justierung, die auch über Monate erhalten bleibt.

Da die Apparatur in erster Linie für große Höhen konzipiert ist, würde das um Größenordnungen stärkere Rückstreusignal aus niedrigen Höhen die im Photon-Counting-Mode betriebenen Photomultiplier überlasten. Aus Abb. 8 ist die große Dynamik des Rückstreusignals als Funktion der Höhe ersichtlich. Sie beträgt zwischen 20 und 50 km bereits mehr als drei Zehnerpotenzen. Zur Vermeidung einer Übersteuerung ist daher im Strahlengang des Detektors eine schnell-drehende Lochscheibe (Chopper) angebracht, die bei jedem Laserschuss die Multiplier kurzzeitig - für etwa hundert Mikrosekunden - abdeckt. Von diesem Chopper wird ein Triggersignal abgegriffen, das den Zündzeitpunkt des Lasers und den Beginn der Speicherung des Rückstreusignals synchronisiert (Abb. 4).

Eine einfache Möglichkeit, um auch das Rückstreusignal aus niedrigeren Höhen nutzen zu können, ist das kurzzeitige Einfügen eines Graufilters (Abschwächung etwa 100-fach) in den Strahlengang des Nachweissystems. Auf diese Weise kann das Rückstreusignal bereits ab einer Höhe von etwa 10 km genutzt werden. Voraussetzung dafür ist, daß Sende- und Empfangsspiegel genügend nahe aneinandergrenzen (vgl. Abb. 7), wodurch ein vollständiger Überlapp zwischen emittiertem Strahl und Gesichtsfeld des Empfängers bereits nach wenigen Kilometern Höhe auftritt.

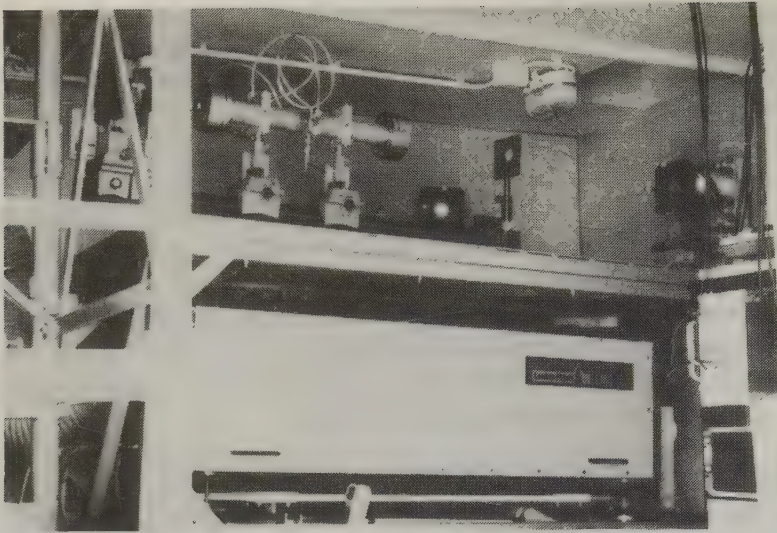


Abb. 6: Der Laser mit der
Ramanzelle auf der Zug-
spitze

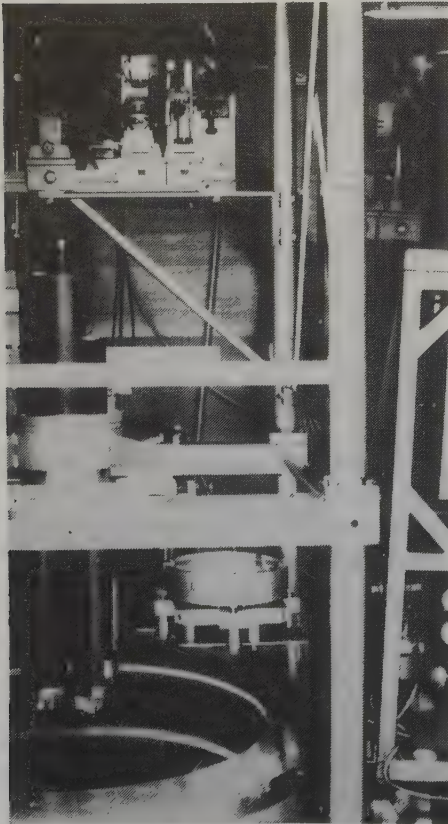


Abb. 7: Das Nachweissystem
auf der Zugspitze (unten
der Empfangsspiegel, in der
Mitte der Detektorblock)

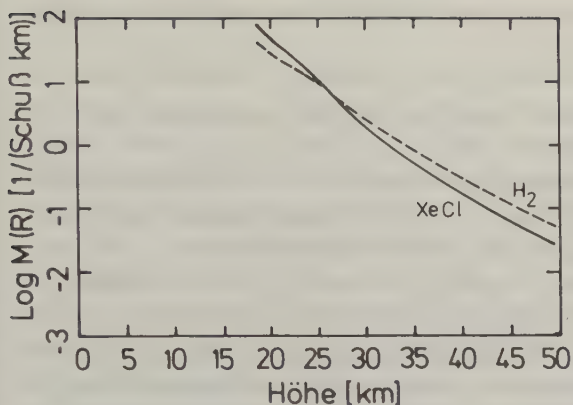


Abb. 8: Die rückgestreute Intensität bei der Absorptionswellenlänge (XeCl, durchgezogene Linie) und bei der Referenzwellenlänge (Ramanverschiebung in H₂, gestrichelt) als Funktion der Höhe. Angegeben ist die Zahl der nachgewiesenen Photonen pro Schuß und Kilometer. Im Bereich um 25 km Höhe ist die zusätzliche Rückstreuung durch vulkanische Aerosole erkennbar.

Im Gegensatz zu dem hier skizzierten Meßaufbau sind Ozonmessungen in der (unteren) Stratosphäre mit Lidar bisher meist mit Farbstofflasersystemen durchgeführt worden /9,10,12/. Dabei treten jedoch nicht unerhebliche experimentelle Schwierigkeiten auf. Um abstimmbar im UV arbeiten zu können, muß zunächst das Licht einer starken Pumplaserquelle (Nd:YAG, ca. 1 J Pulsenergie) und anschließend die damit erzeugte Farbstofflaserwellenlänge verdoppelt werden. Das bedeutet einen komplizierten und daher schwer justierbaren Strahlengang. Die Photolyse des Farbstoffs durch das UV-Licht schafft zusätzliche Probleme beim Dauerbetrieb. Des weiteren wird bei diesem Verfahren die effektive Laserleistung stark reduziert (40 mJ), so daß die erreichbare statistische Genauigkeit in großen Höhen stark eingeschränkt ist.

Wegen der bereits erwähnten Bandenstruktur ist der Absorptionswirkungsquerschnitt von Ozon eine relativ glatte Funktion der Wellenlänge. Infolgedessen ist die Differenz im Absorptionswirkungsquerschnitt bei den zwei verwendeten Wellenlängen des Farbstofflasers ($\Delta\lambda \approx 5$ nm) relativ gering, was wiederum der Genauigkeit bei der Bestimmung der Ozonkonzentration abträglich ist.

Das hier eingesetzte System zeichnet sich im Gegensatz dazu gerade dadurch aus, daß

- die Absorptionswellenlänge direkt durch einen leistungsstarken Excimerlaser erzeugt wird.
- wegen der stimulierten Raman-Streuung ein einfacher Versuchsaufbau gewählt werden kann. Dies ist insbesondere bei den extremen Witterungsbedingungen bei Feldmessungen von Bedeutung.
- der Referenzstrahl erstmals völlig gleichzeitig und kollinear mit dem Pumplaserstrahl in die Atmosphäre emittiert wird.
- geeignete Raman-Medien (z.B. H_2 und D_2) für einen Dauerbetrieb über eine ganze Nacht verfügbar sind (Farbstoffe werden im UV bei hohen Repetitionsraten binnen einiger Stunden unbrauchbar).
- die Differenz im Absorptionswirkungsquerschnitt bei der Pump-laserlinie und der Raman-verschobenen Linie mehr als zwei Zehnerpotenzen beträgt (vgl. Kap. 4.5.)

Diese Vorteile kommen insbesondere dann zum Tragen, wenn große Meßentfernungen eine hohe Dauerleistung erforderlich machen und wenn Wert auf eine kontinuierliche Langzeitbeobachtung gelegt wird. Die große Differenz zwischen Absorptions- und Referenzwellenlänge erfordert dabei jedoch eine sorgfältige Klärung des Einflusses der differentiellen Rückstreu- und Extinktionsterme aus Gl. (10). Eine Diskussion hierüber erfolgt in Kap. 4.4.

4. Diskussion der Genauigkeit

Bei der Diskussion möglicher Fehlerquellen, die die Genauigkeit einer Lidarmessung beeinträchtigen, genügt es normalerweise, die Hauptfehlerquelle, nämlich die statistische Verteilung der rückgestreuten Photonen, zu betrachten. Da jedoch die mit der hier beschriebenen Apparatur erzielbare statistische Genauigkeit sehr hoch ist, ist die Genauigkeit der Messung zum Teil durch andere Fehlerquellen limitiert. Dabei handelt es sich um systematische Fehler, die beispielsweise durch einen nicht genügend genau bekannten Absorptionswirkungsquerschnitt des Ozons entstehen. Aber auch mögliche Querempfindlichkeiten und insbesondere die Auswirkung der relativ großen Differenz der hier verwendeten Meßwellenlängen sollen diskutiert werden.

4.1. Mögliche Querempfindlichkeiten

Atmosphärische Spurengase, die auf einer der beiden benützten Meßwellenlängen absorbieren, könnten bei der Ermittlung der Ozonkonzentration zu systematischen Fehlern führen.

Die einzige hierfür in Frage kommende Substanz ist wohl SO_2 , das ein dem Ozon sehr ähnliches Absorptionsverhalten zeigt. Jedoch ist die Konzentration von SO_2 im Vergleich zu O_3 in der Stratosphäre um mehrere Größenordnungen kleiner /36/, so daß die durch SO_2 hervorgerufene Extinktion wegen Gl. (4) vernachlässigbar ist.

Nur ein sehr außergewöhnliches Ereignis wie der Ausbruch des Vulkans El Chichon in Mexiko (April 1982) konnte für einige Tage eine derart hohe lokale Konzentration an stratosphärischem SO_2 erzeugen, daß sie als Ozonexzess in Satellitenmessungen - bei denen durch eine Extinktionsmessung im nahen UV der Gesamt ozongehalt bestimmt wird - nachgewiesen werden konnte /37/.

Die unter Umständen hohe SO_2 -Konzentration am Boden spielt für Messungen in der Stratosphäre bei der differentiellen Absorption keine Rolle (vgl. Kap. 2). Somit sind systematische Fehler durch Querempfindlichkeiten in der Praxis auszuschließen.

4.2. Statistische Genauigkeit bei Nachmessungen

Eine unvermeidliche Fehlerquelle ist dadurch gegeben, daß die im Empfangssystem nachgewiesenen Photonen, die aus einem vorgegebenen Entfernungsintervall zurückgestreut werden, statistisch verteilt sind. Bereits in Abb. 8 wurde eine typische Messung der Rückstreuintensität (Zahl der nachgewiesenen Photonen pro Schuß und Kilometer) für die beiden verwendeten Wellenlängen als Funktion der Höhe gezeigt. Wegen der stark unterschiedlichen Extinktion der beiden Wellenlängen im Bereich hoher Ozonkonzentration schneiden sich die beiden Kurven in etwa 25 km Höhe.

Der Fehler δM in der Bestimmung der Zahl der nachgewiesenen Photonen M ist durch die Poissonstatistik bestimmt. Deshalb ist der relative Fehler $\delta M/M$ pro Laserschuß bei vernachlässigbarem Strahlungshintergrund gegeben durch

$$\delta M/M = 1/\sqrt{M} \quad (15)$$

Zur Ermittlung der Ozonkonzentration gemäß Gl. (10) werden jedoch jeweils vier dieser Meßwerte benötigt: die Zahl der rückgestreuten Photonen $M(R_i, \lambda_j) = M_{ij}$ aus zwei Entfernungsintervallen mit der mittleren Entfernung R_i bei zwei Wellenlängen λ_j .

Ausgehend von Gl. (15) ist der statistische Fehler der Ozonkonzentration δN dann wegen der Fehlerfortpflanzung gegeben durch

$$\delta N = (2\Delta\sigma \cdot \Delta R)^{-1} \sqrt{\sum_j (\delta M_{ij}/M_{ij})^2} = (2\Delta\sigma \cdot \Delta R)^{-1} \sqrt{\sum_j (1/M_{ij})}$$

Für eine Abschätzung genügt es, näherungsweise die Rückstreuintensität M_{ij} aus verschiedenen Entfernungen durch eine mittlere Rückstreuintensität $M_j(R)$ bei den Wellenlängen λ_j ($j = 1, 2$) zu ersetzen. Berücksichtigt man weiterhin, daß der Fehler durch Mittelung über viele Laserschüsse verringert werden kann, so ist

$$\delta N = (2 \cdot \Delta\sigma \cdot \Delta R)^{-1} \sqrt{(1/K) \cdot (2/M_1(R) + 2/M_2(R))} \quad (16)$$

Hierbei ist K die Zahl der Laserschüsse und $\Delta\sigma$ die Differenz des Absorptionswirkungsquerschnitts von Ozon ($\Delta\sigma \approx \sigma(\lambda_1) = 1.3 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$).

In Tab. 3 sind für verschiedene Höhen typische Rückstreuintensitäten pro Laserpuls angegeben, wie man sie aus der in Abb. 8 gezeigten Messung ableiten kann. Legt man eine Repetitionsrate des Lasers von 50 Hz zugrunde, so gibt die dritte Spalte die Zeit an, die nach Gl. (15) für das Erreichen von 1 % statistischer Genauigkeit in der Zahl der rückgestreuten Photonen benötigt wird. Nach Gl. (16) ist die damit erzielbare Genauigkeit der Ozonkonzentration $\delta N = 7.7 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, wenn die Ortsauflösung $\Delta R = 1 \text{ km}$ beträgt. Das bedeutet, daß in 20 km Höhe (mittlere Ozonkonzentration $N = 4.8 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$) mit einer Meßdauer von wenigen Sekunden (Tab. 3) bereits eine relative Genauigkeit der Ozonkonzentration von 16 % erreicht wird.

Nach Tab. 3 beträgt die Dynamik des Rückstreusignals zwischen 20 und 50 km Höhe etwa drei Zehnerpotenzen (unterhalb von etwa 18 km Höhe würden die Photomultiplier überlastet werden). Dieser Sach-

Tab. 3: Photonenstatistik des Rückstreusignals

Angegeben ist die mittlere Zahl der nachgewiesenen Photonen $M(R)$ (pro Schuß und km) für beide Wellenlängen, sowie die für das Erreichen von 1% statistischer Genauigkeit des Rückstreusignals erforderliche Zeit $t(\delta M/M = 1\%)$ bei einer Wiederholfrequenz von 50 Hz und einer Ortsauflösung von 1 km (Zeitangabe in Sekunden oder Minuten).

Höhe (km)	$M(R, \lambda_1) / M(R, \lambda_2)$ (pro Schuß und km)	$t(\delta M/M = 1\%)$ λ_1 / λ_2
15	(560 / 200) ¹	
20	63 / 32	3 s / 6 s
25	13 / 10	15 s / 20 s
30	2 / 2.5	2 m / 1 m
35	0.5 / 0.8	7 m / 4 m
40	0.16 / 0.28	21 m / 12 m
45	0.06 / 0.10	55 m / 33 m
50	0.03 / 0.05	110 m / 70 m

)¹ Verwendung eines Graufilters nötig

verhalt schlägt sich auch in der für das Erreichen einer hohen statistischen Genauigkeit benötigten Meßdauer nieder. Sie reicht von wenigen Sekunden bis zu etwa zwei Stunden. Diese Zeitspannen kommen jedoch den atmosphärischen Gegebenheiten gut entgegen. In der Troposphäre und unteren Stratosphäre kann die Ozonkonzentration sich auf Grund von Wettereinflüssen bzw. stratosphärischer Zirkulation binnen weniger Stunden deutlich ändern. Das hier beschriebene Lidarsystem ist also - bei Mittelungszeiten von wenigen Minuten - durchaus in der Lage, diese Änderung aufzuzeigen. In der oberen Stratosphäre mit ihrer stabilen Temperaturschichtung ist die Variabilität wesentlich geringer, so daß dort binnen einer Nacht nur wenig Änderungen zu erwarten sind. Damit sind Meßzeiten von mehreren Stunden für diese Höhen zulässig.

Die bisherige Diskussion ist an der Tatsache vorbeigegangen, daß die in der Stratosphäre vorliegende Ozonkonzentration selbst stark höhenabhängig ist. Daher ist nicht nur die absolute, sondern auch die relative Genauigkeit $\delta N/N$ der Ozonkonzentration von Bedeutung. Hier wirkt sich in großen Höhen nicht nur der exponentielle Abfall der Luftdichte und damit des Rückstreuensignals (Tab. 3) aus, sondern auch die in der oberen Stratosphäre selbst rasch um mehr als eine Zehnerpotenz abnehmende Ozonkonzentration.

Wie diesem Verhalten entgegengewirkt werden kann, läßt sich aus Gl. (16) ableiten: als wesentlicher Faktor, der die Genauigkeit zu verbessern gestattet, geht neben der Integrationsdauer t (über die Zahl der Laserschüsse) vor allem die Ortsauflösung ΔR (direkt und über die Zahl der rückgestreuten Photonen) ein. Damit ist

$$\delta N \sim \Delta R^{-3/2} t^{-1/2} \quad (17)$$

Infolge dieses Verhaltens ist eine Angabe über die erzielte Genauigkeit nur sinnvoll in Verbindung mit der dabei benützten Ortsauflösung. Das bedeutet aber andererseits, daß mit dem gleichen Datensatz je nach Interessenlage die Ortsauflösung oder die Genauigkeit in den Vordergrund gerückt werden kann. Ein konkretes Beispiel soll für eine Höhe von 40 km gegeben werden, wo die Lei-

Tab. 4: Zusammenhang zwischen Ortsauflösung und Genauigkeit
Bei vorgegebener Ortsauflösung ΔR und gewünschter Genauigkeit $\delta N/N$ der Ozonkonzentration ist die für eine Höhe von 40 km benötigte Integrationsdauer (in Stunden) angegeben.

$\Delta R \backslash \delta N/N$	1 %	2 %	5 %	10 %
∓ 1.25 km	275.0 h	68.7 h	11.0 h	2.7 h
∓ 2.5 km	34.8 h	8.7 h	1.4 h	0.4 h
∓ 3.5 km	12.5 h	3.1 h	0.5 h	0.1 h

stungsfähigkeit der Apparatur wegen des prognostizierten Ozonabbaus von besonderem Interesse ist. Ausgehend von einer mittleren Ozonkonzentration von $6 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ in dieser Höhe und mit den Rückstreuintensitäten aus Tab. 3 ergibt sich ein sehr breiter Spielraum für die benötigte Integrationsdauer, wenn die Ortsauflösung zwischen 1.25 und 3.5 km und die gewünschte Genauigkeit zwischen 1 und 10 % gewählt wird: die Meßdauer reicht von sechs Minuten bis zu elf Tagen (siehe Tab. 4). Bei einer Integrationsdauer von etwa 12 Stunden, also im Laufe einer Nacht, ist je nach Ortsauflösung eine Genauigkeit zwischen einem und fünf Prozent erzielbar.

Wegen der höheren Rückstreuintensität und der höheren Ozonkonzentration ist in geringeren Höhen diesselbe Genauigkeit mit wesentlich geringerer Ortsauflösung und in wesentlich kürzerer Meßzeit erreichbar. Diesem Verhalten kann dadurch Rechnung getragen werden, daß die Ortsauflösung an die jeweilige Höhe angepaßt wird. Beispielsweise eignet sich hierfür eine quadratische Abhängigkeit der Form:

$$\Delta R = A \cdot R^2 \quad (18)$$

Das bedeutet, daß sich zwischen 20 und 40 km Höhe die Ortsauflösung um einen Faktor vier ändert. Eine nach Gl. (18) festgelegte Ortsauflösung ist in Tab. 5 aufgeführt. Auf ihr basierend ist in

Tab. 5: Die Anpassung der Ortsauflösung an die Höhe und die daraus resultierende Genauigkeit der Ozonkonzentration

Als Funktion der Höhe ist in der zweiten Spalte die Ortsauflösung ΔR und in der dritten Spalte die für eine Genauigkeit von zwei Prozent benötigte Integrationsdauer $t(\delta N/N=2\%)$ aufgetragen. Die letzte Spalte gibt die während der typischen Dauer einer Nacht (12 h) erzielbare Genauigkeit $\delta N/N$ in großen Höhen an. (Die Integrationsdauer ist in Minuten bzw. Stunden angegeben.)

H(km)	$\Delta R(\text{km})$	$t(\delta N/N=2\%)$	$\delta N/N(t=12\text{h})$
15	∓ 0.4	7.1 m	
20	∓ 0.6	2.6 m	
25	∓ 1.0	3.2 m	
30	∓ 1.4	16 m	
35	∓ 1.9	1.2 h	$< 1 \%$
40	∓ 2.5	8.7 h	1.7 %
45	∓ 3.1	89 h	5.7 %
50	∓ 3.9	955 h	19 %

Tab. 5 weiterhin die aufzuwendende Zeit t angegeben, wenn eine statistisch bedingte Genauigkeit der Ozonkonzentration von zwei Prozent erreicht werden soll. Diese Anpassung der Ortsauflösung an die Höhe wird bei der routinemäßigen Auswertung immer angewendet.

Tab. 5 verdeutlicht, daß bis in 30 km Höhe stündlich Ozonprofile gewonnen werden können, deren statistische Genauigkeit besser als ein Prozent ist. In der oberen Stratosphäre ist dagegen für eine hohe Genauigkeit die Beobachtung über eine ganze Nacht erforderlich. Zu diesem Zweck werden pro Nacht mehr als eine Million Laserschüsse emittiert. Die gewählte Ortsauflösung in 40 km Höhe (2.5 km) stellt dabei einen Kompromiß aus dem in Tab. 4 angebotenen Spielraum dar. Wenn man die im Lauf des Jahres unterschiedlich lange Dauer der Nacht berücksichtigt, ergibt sich damit eine er-

reichbare Genauigkeit von etwa 1.5 bis 2 %. Die in 45 km bzw. 50 km Höhe erzielbare Meßgenauigkeit liegt entsprechend im Bereich von rund 4 - 7 % bzw. 15 - 25 %.

Diese Diskussion belegt die außerordentliche Leistungsfähigkeit des hier vorgestellten Lidarsystems. Kein anderes kontinuierlich einsetzbares Meßverfahren kann diese Genauigkeit - vor allem im Bereich der mittleren Stratosphäre in etwa 40 km Höhe - bisher nachweisen. Die Grenzen der Möglichkeiten, wie sie die Lidartechnik bietet, sind damit jedoch noch nicht erreicht (vgl. Kap. 6.).

4.3. Statistische Genauigkeit bei Tagmessungen

Da sich die Ozonkonzentration in einem labilen Gleichgewicht befindet, an dem insbesondere auch photochemische Reaktionen beteiligt sind, kann davon ausgegangen werden, daß im Lauf von 24 Stunden systematische Änderungen in der Ozonkonzentration auftreten. Die Amplitude dieser Schwankung hängt allerdings von vielen Faktoren ab und kann daher eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Höhe aufweisen. Die Beobachtung des Tagesgangs liefert daher Aufschluß über das Zusammenwirken und die relative Bedeutung vieler Einzel-faktoren. Viele konventionelle Meßmethoden sind nicht imstande, diesen Tagesgang zu verfolgen, da sie auf die Sonne als Strahlungsquelle angewiesen sind. Dies gilt beispielsweise für die Dobson-, Umkehr- und BUV-Methode. So liegen bisher nur einige wenige Messungen mit Raketen in großen Höhen (Mesosphäre) vor. Nach der photochemischen Theorie sollte dort der Tagesgang der Ozonkonzentration so ausgeprägt sein, daß er auch mit einigen wenigen Messungen geringer Genauigkeit nachweisbar ist. In der Stratosphäre wird jedoch nach den theoretischen Berechnungen die Amplitude der Schwankung immer kleiner werden, so daß sie nur mehr von einem sehr genauen Meßsystem erfaßt werden kann.

Unterhalb von 30 km, wo die atmosphärische Zirkulation eine dominierende Rolle spielt, ist das Problem der Tag/Nacht-Schwankungen mit der photochemischen Theorie allein nicht mehr adäquat beschreibbar, so daß bisher nach unserem Wissen für diesen Höhen-

bereich weder eine gesicherte theoretische Behandlung, noch eine aussagekräftige experimentelle Untersuchung vorliegt.

Bei Lidarmessungen ist das Hauptproblem einer Messung am Tag der durch die Sonne hervorgerufene starke Anstieg der Hintergrundstrahlung. Eine grobe Abschätzung der am Tag zu erwartenden Hintergrundstrahlung gewinnt man durch den Vergleich der scheinbaren Helligkeiten /38/ von Sonne ($m = -26.8$) und Vollmond ($m = -12.5$). Die scheinbare Helligkeit ist in der Astronomie ein logarithmischer Maßstab für die am Erdboden beobachtete Strahlungsintensität P eines Himmelskörpers ($m = -2.5 \log P$). Daraus läßt sich das Verhältnis der Hintergrundzählraten von Sonne und Mond ableiten:

$$\frac{P_b(\text{Sonne})}{P_b(\text{Mond})} = 10^{0.4(26.8-12.5)} = 10^{5.7} = 5 \cdot 10^5$$

Die Hintergrundzählrate bei Tag ist damit im Vergleich zur Nacht um mehr als fünf Zehnerpotenzen höher. Die gemessene Hintergrundzählrate bei Vollmond liegt im Bereich von $2 \cdot 10^{-2}$ Ereignissen pro Schuß und km bei 353 nm; bei 308 nm ist sie mehr als eine Größenordnung geringer. Andererseits ist die maximale Zählrate durch die Übersteuerung der Nachweiselektronik bestimmt und beträgt etwa 100 Ereignisse/(Schuß km). Wegen der oben durchgeführten Abschätzung ist daher klar, daß ohne zusätzliche Maßnahmen keine Tagmessungen durchführbar sind. Dies bestätigten auch Messungen des Tageshintergrunds mit Hilfe von Abschwächern, wobei hochgerechnet auf eine Messung ohne Abschwächer eine maximale Zählrate von 350 Ereignissen/(Schuß km) bei der Laserlinie (308 nm) und 7000 Ereignissen/(Schuß km) bei der Referenzlinie (353 nm) festgestellt wurden. Das Verhältnis der Hintergrundzählraten auf den beiden Linien beträgt also 1 : 20.

Maßnahmen zur Eindämmung des Hintergrunds zielen deshalb einerseits darauf ab, die Bandbreite des optischen Filters im Nachweis-system speziell bei der Referenzwellenlänge weiter einzuengen, andererseits auch das Gesichtsfeld des Empfangsspiegels zu verkleinern, wodurch sich die Hintergrundstrahlung auf beiden Wellenlängen gleichermaßen reduzieren läßt.

- Einengung der optischen Bandbreite

Die Bandbreite des dielektrischen Interferenzfilters für die Referenzlinie beträgt 10 nm. Eine wesentlich schmalere Halbwertsbreite läßt sich mit Lyotfiltern erzielen, wobei mit einer Transmission von knapp 50 % gerechnet werden kann. Infolgedessen wird für die Tagmessungen ein dreistufiges Lyotfilter mit einer Halbwertsbreite von 1.8 nm (Fa. Halle, Berlin) zusätzlich in den Strahlengang der Referenzwellenlänge im Detektor eingebaut. Wegen der großen Temperaturschwankungen auf der Zugspitze muß dieses Filter mit einer temperaturstabilisierten Halterung versehen werden. Damit wird der Hintergrund bei 353 nm im Vergleich zur Signalintensität um einen Faktor 5.6 reduziert.

- Verkleinerung des Gesichtsfeldes des Empfangssystems

Eine weitere Reduktion des Strahlungshintergrunds läßt sich durch eine Verkleinerung des Gesichtsfeldwinkels des Detektors erreichen. Diese Maßnahme wirkt sich auf beide Wellenlängen gleichermaßen aus. Allerdings ist der Gesichtsfeldwinkel seinerseits durch die Divergenz des Lasers und die Strahlaufweitungs-optik des Sendesystems bestimmt. Da letztere bei der ursprünglichen Konzeption der Apparatur bereits optimiert wurde, wurde das Hauptaugenmerk auf den Einbau eines leistungsfähigeren Resonators gelegt. Dabei gelang es, durch Verwendung von Resonatorspiegeln mit einem Verhältnis der Krümmungsradien von 15:1 (vorher 5:1) die Strahldivergenz um einen Faktor 1.5 zu verbessern ohne dabei die Ausgangsleistung des Lasers zu beeinträchtigen. Dies ermöglicht eine Reduzierung des Raumwinkels des Nachweissystems um einen Faktor 2.25.

Beide Maßnahmen zusammen bewirken folgende Reduktion des Strahlungshintergrundes:

- bei 308 nm um einen Faktor 2.25
- bei 353 nm um einen Faktor 25.2

Anzumerken ist, daß durch das Lyotfilter bei 353 nm auch das Signal um einen Faktor zwei geschwächt wird.

Die resultierende Hintergrundzählrate von 150 bzw. 280 Ereignissen/(Schuß km) erfordert allerdings immer noch eine gewisse zusätzliche Abschwächung (typisch fünffach) zum Schutz der Nachweiselektronik gegen Übersteuerung. Die dadurch hervorgerufene Schwächung des Rückstreusignals ermöglicht dabei eine Ausdehnung des Meßbereichs auch auf niedrigere Höhen (unterhalb von 15 km). Andererseits werden jedoch Messungen in der oberen Stratosphäre erschwert.

Es fragt sich nun, wie sich diese Maßnahmen zur Eindämmung des Hintergrunds auf die statistisch bedingte Genauigkeit der Ozonkonzentration auswirken. Die relative Genauigkeit $\delta N/N$ ist bei nicht vernachlässigbarem Strahlungshintergrund analog zu Gl. (16) gegeben durch

$$\delta N/N = (2 \cdot \Delta R \cdot \Delta \sigma \cdot N)^{-1} \sqrt{1/K \cdot \{2(M_1 + 2M_{b1})/M_1^2 + 2(M_2 + 2M_{b2})/M_2^2\}} \quad (16a)$$

wobei der Index wieder die Wellenlänge und M_b die entsprechende Hintergrundzählrate bezeichnet. Die Bedeutung der anderen Parameter ist ansonsten wieder die gleiche wie in Gl. (16).

Nach Gl. (16a) ist im Fall von $M < M_b$, also in großen Höhen, mit einer zunehmend schlechteren Meßgenauigkeit im Vergleich zu Nachtmessungen zu rechnen. Welche Meßzeit ist nun unter Tagbedingungen erforderlich um eine gewünschte Genauigkeit bei vorgegebener Ortsauflösung zu erreichen? Dazu sollen zwei Extremfälle untersucht werden: die gewünschte statistische Genauigkeit soll einmal 2 %, zum andern 10 % betragen.

In Tabelle 6 sind die erforderlichen Meßzeiten am Tag für die im Moment vorhandene Apparatur als Fall A angeführt. Dabei ist die Ortsauflösung wie im Fall der Nachtmessung wieder der Höhe angepaßt (vgl. Gl. (18)). Bei nicht zu hohen Anforderungen an die Meßgenauigkeit ($\delta N/N = 10\%$) ergibt sich damit ein Meßintervall von mehr als 10 km in Höhen um 20 km, wenn eine Integrationszeit von mehreren Stunden zur Verfügung steht.

Tab. 6: Statistische Genauigkeit bei Tagmessungen

Die für eine Genauigkeit der Ozonkonzentration von 2 % bzw. 10 % erforderliche Meßzeit unter Tagbedingungen. Fall A: momentaner Entwicklungsstand der Apparatur, Fall B: Stand nach Durchführung weiterer Maßnahmen (Die Integrationsdauer ist in Minuten bzw. Stunden angegeben)

Höhe (km)	Fall A Meßzeit für $\delta N/N = 2\% / 10\%$	Fall B Meßzeit für $\delta N/N = 2\% / 10\%$
15	6.5 h / 15.6 m	(20.5 m / 0.8 m) ¹
20	10.7 h / 25.7 m	18.2 m / 0.8 m
25	36.5 h / 1.5 h	1.0 h / 2.3 m
30	23.5 h	16.3 h / 39.1 m
35		10.5 h

)¹ Übersteuerung der Photomultiplier durch Rückstreusignal

Es stellt sich nun die Frage, welcher weitere Spielraum sich auf der Grundlage der vorhandenen Apparatur - also mit dem vorhandenen Laser - für die Zukunft noch bietet:

1) Bezüglich des Lyotfilters ist eine sinnvolle untere Schranke durch die Bandbreite des momentan eingesetzten XeCl-Lasers (und damit auch des Referenzstrahls) vorgegeben. Sie beträgt etwa 0.6 nm. Die Halbwertsbreite des Lyotfilters läßt sich also noch um einen Faktor zwei auf 0.9 nm einengen.

2) Die Laserdivergenz kann mittels anderer Resonatorspiegel wohl kaum noch wesentlich verbessert werden. Es bleibt als mögliche Alternative die Sendedivergenz durch eine zusätzliche Strahlaufweitung zu verbessern, wobei ein Faktor zwei sicherlich eine sinnvolle obere Grenze darstellt, da bereits hierfür ein Aussendespiegel mit 40 cm Durchmesser erforderlich wäre.

Die aufgrund dieser beiden Maßnahmen zu erwartende verkürzte Integrationsdauer ist in Tab. 6 als Fall B aufgeführt. Die Hintergrundzählrate ist dabei für beide Wellenlängen etwa 35 Ereignisse/ (Schuß km). Damit wären zusätzliche Maßnahmen zum Schutz des Nachweissystems gegen Übersteuerung durch die Hintergrundstrahlung nicht mehr erforderlich.

Aus Tab. 6 ist ersichtlich, daß im Fall B sich zwar der Meßbereich nach oben hin vergrößert, gleichzeitig jedoch dabei die Photomultiplier durch das jetzt ungeschwächte Signal in Höhen unterhalb etwa 15 km übersteuert würden. Insgesamt wird dabei also das Meßintervall nur unwesentlich verlängert, dabei jedoch mehr zu größeren Höhen hin verschoben. Der eigentliche Fortschritt kann dabei offensichtlich bei der Meßgenauigkeit erreicht werden: bei gleicher Meßzeit ließe sich eine mehr als fünffach höhere Genauigkeit erzielen.

Insgesamt gesehen bietet also die momentan aufgebaute Apparatur die Möglichkeit, Messungen am Tag in einem Höhenintervall von mehr als 10 km mit einer Genauigkeit von etwa 10 % durchzuführen. Die zur Zeit benötigte Abschwächung könnte bei einem weiteren Ausbau der Apparatur entfallen, wodurch die Genauigkeit der Messung weiter gesteigert und das beobachtbare Höhenintervall weiter vergrößert werden könnte.

Erheblich günstigere Perspektiven in Bezug auf Tagmessungen ergeben sich, wenn es gelingt, den XeCl-Laser schmalbandiger zu betreiben ohne dabei an Leistung zu verlieren. Eine Diskussion hierüber findet sich in Kapitel sechs.

4.4. Einfluß des unterschiedlichen atmosphärischen Streuverhaltens bei den beiden Meßwellenlängen

Während der statistische Fehler eine gut abschätzbare Größe darstellt, lassen sich systematische Fehler häufig schwerer quantifizieren. Dies gilt insbesondere bei der Berücksichtigung des unterschiedlichen atmosphärischen Streuverhaltens der beiden Meßwellenlängen, dem nach Gl. (10) durch die beiden Korrekturterme A und B Rechnung getragen wird. Dabei ist jedoch im Prinzip die Kenntnis des Streuverhaltens sowohl der Luftmoleküle als auch der Aerosole nötig. Gerade die Aerosolstreuung war jedoch in den letzten Jahren durch den Ausbruch des Vulkans El Chichon in Mexiko im April 1982 starken Veränderungen unterworfen.

Daher soll zunächst auf die normale und die durch den Vulkanausbruch veränderte Aerosolverteilung eingegangen werden und dann Folgerungen bezüglich des Einflusses auf die Lidarmessungen in der Stratosphäre gezogen werden. Wegen der Unterschiede in der Aerosolkonzentration lassen sich dabei die Bereiche oberhalb und unterhalb 30 km Höhe getrennt behandeln.

Der Themenkomplex des unterschiedlichen Streuverhaltens ist insofern von wesentlicher Bedeutung, als üblicherweise die DIAL-Technik mit sehr nahe beieinanderliegenden Meßwellenlängen arbeitet. Dagegen nimmt das hier verwendete System bewußt eine große Differenz der Meßwellenlängen in Kauf. Das heißt, daß normalerweise die Korrekturterme A und B völlig bedeutungslos sind, während angesichts der hier angestrebten hohen Genauigkeit auch diese Terme bei der Berechnung der Ozonkonzentration mitberücksichtigt werden.

Dieses Kapitel ist daher in vier Abschnitte gegliedert. Zunächst werden die Grundzüge der Aerosolstreuung angesprochen. Anschließend wird die Situation in der oberen Stratosphäre diskutiert, wo besonders einfache Verhältnisse vorliegen. Schließlich wird für die untere Stratosphäre der Einfluß des differentiellen Rückstreuungsterms B und des differentiellen Extinktionsterms A getrennt behandelt.

4.4.1. Grundzüge der Aerosolstreuung

Im Gegensatz zur Rayleighstreuung, bei der sich das Streuverhalten einfach durch Gl. (2) und (4) beschreiben läßt, ist die Aerosolstreuung dadurch charakterisiert, daß der Radius r der streuenden Teilchen in der Größenordnung der Wellenlänge λ des gestreuten Lichts liegt. Die Streuung ist daher im wesentlichen eine Funktion des Größenparameters $x = 2\pi r/\lambda$. Da stratosphärische Aerosole hauptsächlich als Tröpfchen vorliegen, sollte die Streuung an diesen Teilchen in guter Näherung durch die Mie-Theorie beschrieben werden. Der Streuwirkungsquerschnitt wird dabei gewöhnlich durch einen Effizienzfaktor Q_{ex} bzw. Q_{bs} (ex steht für Extinktion, bs für Rückstreuung) beschrieben, der die Streuung an einem einzelnen Partikel in Relation zu seinem geometrischen Streuquerschnitt setzt:

$$\sigma(x) = \pi \cdot r^2 \cdot Q_{\text{ex}}(x, m) \quad \text{und} \quad \sigma(\pi; x) = (1/4\pi) \cdot \pi \cdot r^2 \cdot Q_{\text{bs}}(x, m) \quad (19)$$

Die Koeffizienten der Streuung α_M und der Rückstreuung β_M gewinnt man durch Faltung mit der Aerosolgrößenverteilung:

$$\alpha_M = \int_0^{\infty} (\pi \cdot r^2 \cdot Q_{\text{ex}}(x, m) \cdot n_M(r)) \, dr$$

$$\beta_M = \int_0^{\infty} (\pi \cdot r^2 \cdot Q_{\text{bs}}(x, m) \cdot n_M(r)) \, dr$$

Hier ist m der Brechungsindex und $n_M(r)$ bezeichnet die Aerosolkonzentration mit einem Radius zwischen r und dr .

Die Zusammensetzung und Größenverteilung der Aerosole in der Stratosphäre ist variabel. Eine häufig benutzte Annahme ist das Vorliegen von Schwefelsäuretröpfchen (75% H_2SO_4 /25% H_2O), deren Brechungsindex für $\lambda \approx 1\mu\text{m}$ bei stratosphärischen Temperaturen etwa $m = 1.45$ ist /39/. Die Größenverteilung wird zumeist mit einer sog. logarithmischen Normalverteilung beschrieben /14,40/:

$$n_M(r) \, dr = (N_0/\sqrt{2\pi}) \cdot \exp(-\alpha^2/2) \, d\alpha$$

wobei $\alpha = (\ln(r/r_0))/\ln \sigma_0$ ist.

Die hier eingeführten Parameter bedeuten:

N_O = Konzentration der Aerosole

r_O = mittlerer Radius der Aerosole

σ_O = Halbwertsbreite der Größenverteilung

Häufig wird für eine Höhe von 15-20 km folgender Datensatz /40/ verwendet:

$$N_O = 10 \text{ cm}^{-3}, \sigma_O = 1.86, r_O = 0.072 \text{ } \mu\text{m} \quad (\text{Verteilung I})$$

Messungen derselben Arbeitsgruppe in 25 km Höhe ergeben /14/:

$$N_O = 5 \text{ cm}^{-3}, \sigma_O = 1.6, r_O = 0.08 \text{ } \mu\text{m} \quad (\text{Verteilung II})$$

Ein wesentlicher Gesichtspunkt bei der Berücksichtigung der Aerosole für Lidarmessungen ist, wie in Kap. 2 erläutert wurde, die Intensität der Aerosolstreuung (verglichen mit der Rayleighstreuung), aber auch ihre Wellenlängenabhängigkeit, d.h. die Bestimmung des Exponenten η in

$$\sigma_M(\lambda_1)/\sigma_M(\lambda_2) = (\lambda_1/\lambda_2)^{-\eta} \quad (19a)$$

Dafür ist zunächst die Kenntnis der Effizienzfaktoren Q_{ex} und Q_{bs} erforderlich. Ihre Berechnung wurde nach der Mietheorie /20/ für verschiedene Brechungsindizes durchgeführt. Ein Beispiel für einen Brechungsindex von $m = 1.48$ zeigt Abb. 9.

Für eine Diskussion des Einflusses der Aerosolstreuung auf die Messung der Ozonkonzentration ist die Abweichung des beobachteten Streuverhaltens von dem einer aerosolfreien Atmosphäre ("Rayleighatmosphäre") von Interesse. Infolgedessen ist eine aussagekräftige Größe nicht nur der absolute, sondern auch der relative Beitrag der Aerosolstreuung, nämlich das Aerosolstreuverhältnis $S = \beta_M/\beta_R$. Damit lassen sich nun die normalerweise zu erwartenden Hintergrundwerte der Aerosolstreuung im Höhenbereich 15-25 km abschätzen:

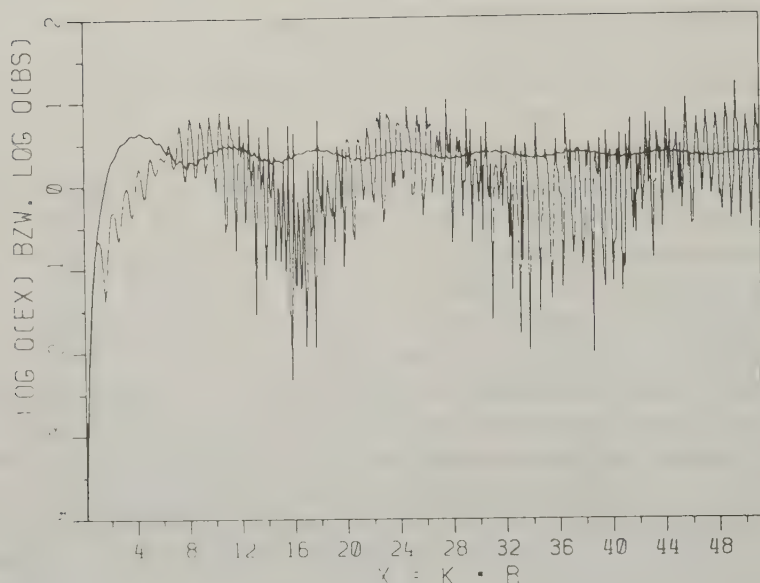


Abb. 9: Die Effizienzfaktoren der Rückstreuung $Q(BS)$ (stark modulierte Kurve) und der Extinktion $Q(EX)$ (schwach modulierte Kurve) als Funktion des Größenparameters X für einen Brechungsindex von $m = 1.48$ (in logarithmischer Darstellung). R bezeichnet den Radius der streuenden Sphäre, K ist der Wellenvektor $K = 2\pi/\lambda$.

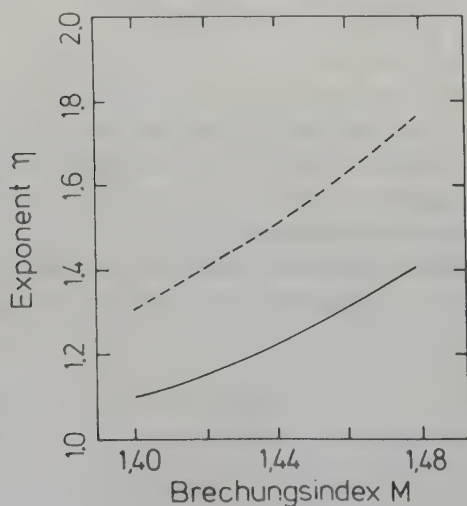


Abb. 10: Der Exponent der Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung für verschiedene reale Brechungsindices. Durchgezogene Kurve: Größenverteilung I; gestrichelte Kurve: Größenverteilung II

Verteilung I

Verteilung II

β_M (353nm)	$2 \cdot 10^{-5}$ (1/km sr)	$5 \cdot 10^{-6}$ (1/km sr)
α_M (353nm)	$8 \cdot 10^{-4}$ (1/km)	$3 \cdot 10^{-4}$ (1/km)
$S = \beta_M/\beta_R$	0.03	0.02

Um sich Klarheit über die Streubreite der möglichen Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung zu verschaffen, wurden die oben aufgeführten Verteilungen für denkbare Brechungsindizes zwischen 1.40 und 1.48 auf ihre Wellenlängenabhängigkeit im Bereich 300 - 350 nm untersucht. Es findet sich eine Streubreite des Exponenten $\eta = 1.1 - 1.75$ (Abb. 10). Die leichte Zunahme des Brechungsindex für Wasser um 2% im UV im Vergleich zum IR legt die Annahme eines ähnlichen Verhaltens für die H_2SO_4/H_2O -Aerosole nahe, so daß im hier vorliegenden Fall eher ein Brechungsindex von $m = 1.48$ gerechtfertigt ist. Ein vernünftiger Kompromiß zwischen den beiden Größenverteilungen ist dann der Wert $\eta = 1.6$.

Diese Überlegung ist deshalb wichtig, weil bei der Referenzlinie der Anteil der Aerosolstreuung durch den Vergleich mit der leicht zu berechnenden reinen "Rayleighatmosphäre" isoliert werden kann, bei der Absorptionslinie jedoch die zusätzliche Extinktion durch Ozon dies unmöglich macht. Folglich muß das Aerosolstreuverhalten bei der Absorptionslinie aus dem bei der Referenzlinie unter Einbeziehung der Wellenlängenabhängigkeit abgeleitet werden.

Der Ausbruch des Vulkans El Chichon hat die Aerosolkonzentration in der Stratosphäre ab Mai 1982 stark erhöht. Nach dem gerade Gesagten gestattet es die Beobachtung bei der Referenzlinie, diese Veränderungen auch mit dem hier beschriebenen Lidarsystem zu verfolgen. Die kontinuierliche Beobachtung von Oktober 1982 bis November 1984 ergibt dabei folgende Situation (vgl. Abb. 11 und 12):

Das Aerosolstreuverhältnis $S = \beta_M/\beta_R$ zeigt einen maximalen Wert $S \approx 1.6$, der um die Jahreswende 1982/83 in rund 17-20 km Höhe auftrat. Gleichzeitig war auch in etwa 30 km Höhe noch eine meßbare Aerosolkonzentration feststellbar ($S \approx 0.1$). In der Folgezeit nahm die Aerosolkonzentration stark ab, wobei diese Abnahme ungefähr

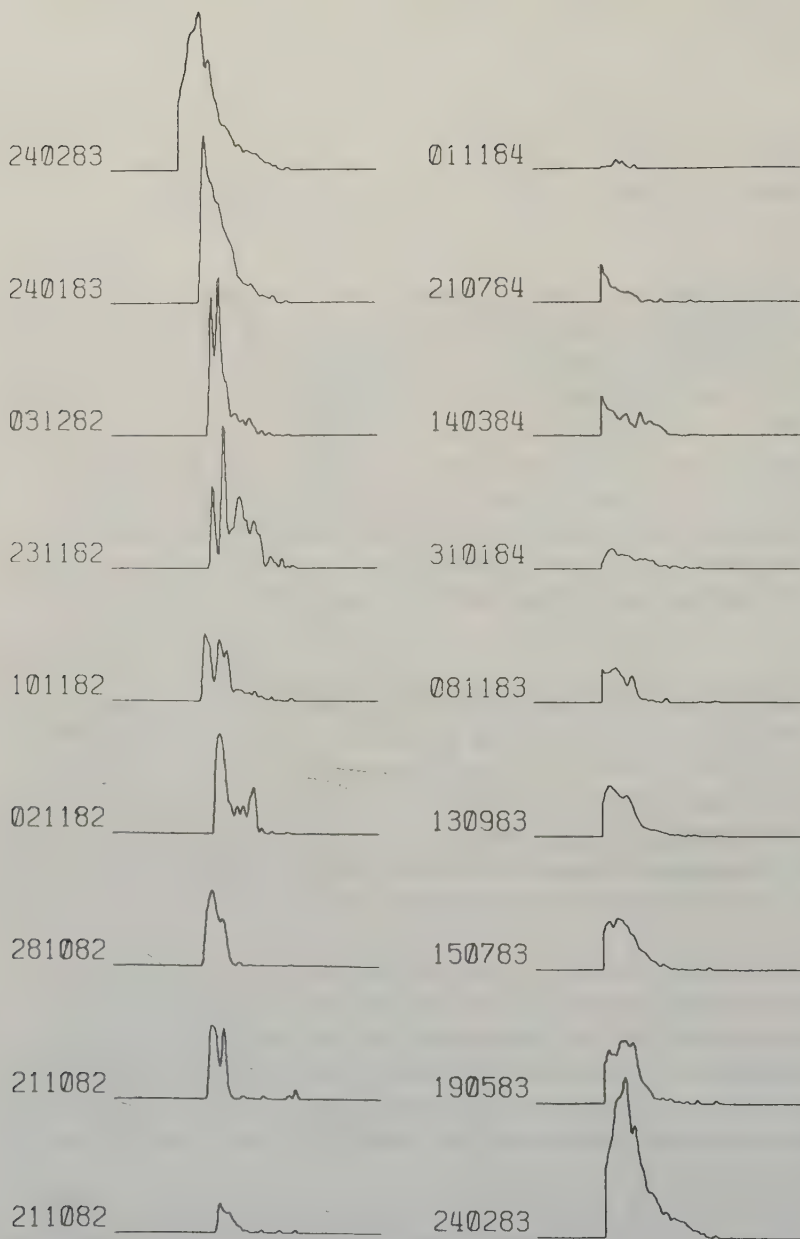


Abb. 11: Die Variabilität des Aerosolstreuverhältnisses β_M/β_R im Zeitraum zwischen Oktober 1982 und November 1984. Als Abszisse ist die Höhe zwischen 0 und 50 km (von links nach rechts) aufgetragen, als Ordinate das Aerosolstreuverhältnis (1 cm entspricht einem Streuverhältnis von $\beta_M/\beta_R = 0.5$); das Datum ist verschlüsselt angegeben (211082 = 21.10.1982 etc.).

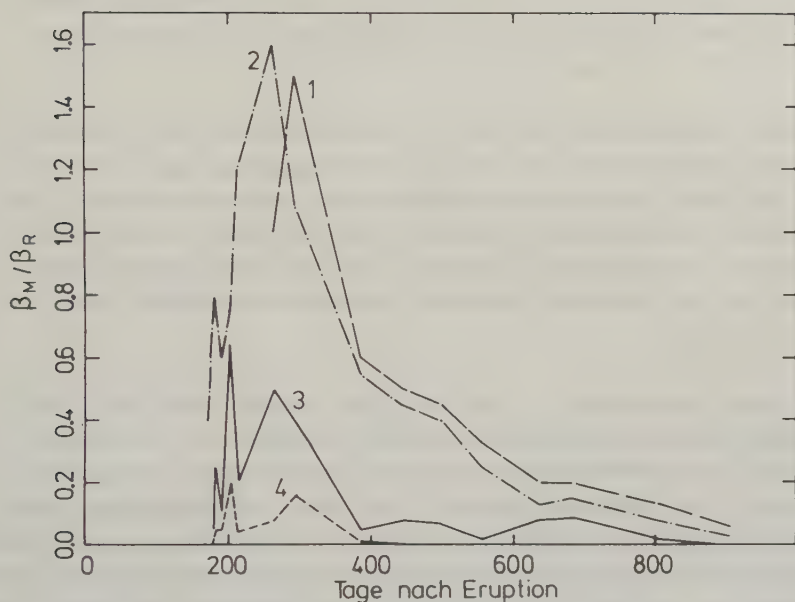


Abb. 12: Das maximale Aerosolstreuverhältnis in verschiedenen Höhenbereichen. Die Intervalllänge beträgt jeweils $\Delta R = \pm 1.25$ km:
 Kurve 1: 17.5 km Höhe Kurve 3: 25.0 km Höhe
 Kurve 2: 20.0 km Höhe Kurve 4: 30.0 km Höhe
 Zur Orientierung auf der Zeitskala: 200 Tage = November 1982,
 400 Tage = Juni 1983, 600 Tage = Dezember 1983, 800 Tage = Juli 1984

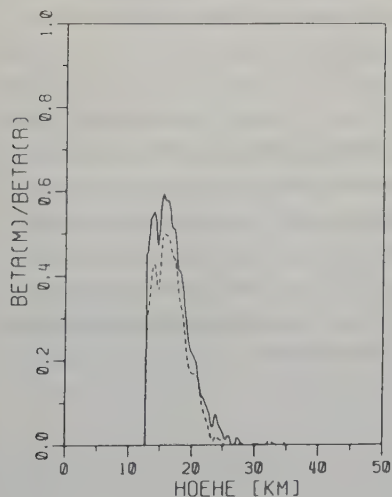


Abb. 13: Das Aerosolstreuverhältnis für verschiedene Referenzwellenlängen
 (Messungen vom 15. 7. 1983).
 Durchgezogen: $\lambda = 353$ nm (H_2);
 gestrichelt: $\lambda = 338$ nm (CH_4)

einem Exponentialgesetz mit einer Zeitkonstante von rund vier Monaten folgte. Die weitere Abnahme setzte sich bis November 1984 fort. Zu diesem Zeitpunkt erreichte das Streuverhältnis in etwa wieder den Hintergrundwert.

Betrachtet man die Struktur dieser Aerosolschicht, so fällt auf, daß sie zu Beginn der Messungen sehr inhomogen war und sich im Laufe einer Nacht ständig veränderte (vgl. insbesondere die beiden ersten Messungen in Abb. 11, die in einer Nacht erfolgten). Verbunden mit einem langsamen Absinken der Höhe dieser Schichten löst sich in der Folgezeit auch die Inhomogenität ihrer Struktur mehr und mehr auf.

Um der Frage nachzugehen, ob mit der sehr starken quantitativen Änderung des Aerosolgehalts auch eine qualitative Änderung des Streuverhaltens verknüpft war, wurden während einiger Nächte Messungen mit verschiedenen Ramangasen und damit auch verschiedenen Referenzwellenlängen durchgeführt (anfangs H_2 und CH_4 , später H_2 und D_2). Ein Beispiel zeigt Abb. 13, wo das Aerosolstreuverhältnis β_M/β_R als Funktion der Höhe aufgetragen ist. Gezeigt ist dabei jeweils die Streuung bei der Referenzlinie für zwei aufeinanderfolgende Messungen, bei denen zunächst Methan ($\lambda = 338.4$ nm, gestrichelt dargestellt) und anschließend Wasserstoff ($\lambda = 353.3$ nm, als durchgezogene Linie dargestellt) als Ramanmedium verwendet wurde. Der Vergleich der Profile liefert einen mittleren Exponenten der Wellenlängenabhängigkeit von $\eta = 1.5$; dies entspricht etwa dem Verhalten unter ungestörten Bedingungen.

Diese Feststellung überrascht insofern, als einige in Amerika durchgeführte direkte Messungen der Aerosolgrößenverteilung in der Stratosphäre mit Hilfe von ballongetragenen Partikelzählern /14,41/ nahelegen, daß die Größenverteilung der Aerosole sich deutlich änderte. Vergleicht man allerdings mehrere mit unterschiedlichen Meßverfahren in der Zeit seit der Eruption vorgenommene Messungen /14,37,41,42,43/, so läßt sich keine Konsistenz der Ergebnisse erkennen, so daß die angegebenen Größenverteilungen nicht

als Grundlage für die Berechnung des Streuverhaltens dienen können. Vielmehr scheint nach unseren eigenen Messungen der Exponent $\eta = 1.6$ zumindest in Europa ab Sommer 1983 bereits wieder eine gute Näherung im Bereich um 350 nm darzustellen.

In den nächsten Abschnitten soll daher auf der Grundlage des hier abgeleiteten Aerosolstreuverhaltens der Einfluß der Aerosolstreuung auf die Meßgenauigkeit diskutiert werden. Grundsätzlich läßt sich der Bereich oberhalb und unterhalb 30 km dabei getrennt behandeln, da nach Abb. 12 eine Aerosolstreuung oberhalb 30 km nur kurzzeitig (um die Jahreswende 1982/83) nachweisbar war.

4.4.2. Höhen zwischen 30 und 50 km

Die Annahme eines fehlenden Aerosolbeitrags in diesem Höhenbereich führt zu einer erheblichen Vereinfachung der Berechnung der Korrekturterme A und B (Gl. (10) - (10c)). In diese Terme geht hier nur mehr die Rayleighstreuung ein. In diesem Fall läßt sich der Rückstreuoeffizient β nach Gl. (2) separieren in $n \cdot \sigma$, weshalb man den Term B umformen kann:

$$B = \ln \frac{n(R_1) \sigma(\pi; \lambda_1) \quad n(R_2) \sigma(\pi; \lambda_2)}{n(R_1) \sigma(\pi; \lambda_2) \quad n(R_2) \sigma(\pi; \lambda_1)} = \ln 1 = 0$$

Das bedeutet, daß in diesem Fall der Term B identisch verschwindet, weil nur ein Rückstreuprozeß beteiligt ist und die Messung bei beiden Wellenlängen gleichzeitig erfolgt. Es sei zur Klärung angemerkt, daß die in den unteren atmosphärischen Schichten durchaus vorhandene Miestreueung diese Folgerung nicht beeinträchtigt, da bei der Differentiellen Absorption nach Kap. 1.2. ja nur die Extinktion im interessierenden Höhenbereich selbst eingeht.

Was den Korrekturterm A betrifft, so setzt er sich nach Gl. (10b) additiv aus den Beiträgen von Rayleigh- und Miestreueung zusammen.

Daher kann an dieser Stelle der Beitrag der Rayleighstreuung der Einfachheit halber gleich für alle Höhenbereiche untersucht werden. Dieser Beitrag ist gegeben durch

$$A = -2 \cdot \Delta R \cdot N_R(R_{12}) \cdot \Delta \sigma_R = -2 \cdot \Delta R \cdot N_R(R_{12}) \cdot (\sigma_R(\lambda_1) - \sigma(\lambda_2))$$

$$= -2 \cdot \Delta R \cdot N_R(R_{12}) \cdot \sigma_R(\lambda_1) \cdot (1 - (\lambda_1/\lambda_2)^4)$$

Nach Gl. (10c) läßt sich der Beitrag des Terms A in Einheiten einer Pseudo-Ozonkonzentration $N_{O_3}^A$ ausdrücken, die dann anschaulich mit der tatsächlichen Ozonkonzentration verglichen werden kann. Es ist

$$N_{O_3}^A(R_{12}) = A / (2 \cdot \Delta R \cdot \Delta \sigma_{O_3})$$

$$= N_R(R_{12}) \cdot (\sigma_R(\lambda_1) / \Delta \sigma_{O_3}) \cdot \{1 - (\lambda_1/\lambda_2)^4\}$$

In Tab. 7 ist die Größe dieses Terms bei Benutzung von H_2 als Ramanmedium für verschiedene Höhen berechnet und dann mit der tatsächlich in dieser Höhe vorliegenden Ozonkonzentration verglichen.

Tab. 7: Absoluter und relativer Beitrag des von der Rayleighstreuung herrührenden differentiellen Extinktionsterms A zur Berechnung der Ozonkonzentration in verschiedenen Höhen.

Höhe (km)	$N_{O_3}^A$ (cm^{-3})	$N_{O_3}^A/N_{O_3}$ (%)
15	$7.0 \cdot 10^{11}$	26.9
20	$3.2 \cdot 10^{11}$	6.6
25	$1.4 \cdot 10^{11}$	3.4
30	$6.6 \cdot 10^{10}$	2.6
35	$3.0 \cdot 10^{10}$	2.2
40	$1.4 \cdot 10^{10}$	2.2
45	$6.2 \cdot 10^9$	2.8
50	$3.5 \cdot 10^9$	5.3

Der Fehler infolge des vollständigen Vernachlässigens des Terms A bei der Berechnung der Ozonkonzentration läge also in Höhen zwischen 20 und 50 km in der Größenordnung von einigen Prozent. Bei Verwendung der anderen Ramanmedien würde sich dieser Wert sogar noch weiter verringern. Man erkennt daraus, daß es oberhalb von 20 km bereits genügt, die Luftdichte auf 10 % genau zu kennen, um einen denkbaren Fehlerbeitrag des differentiellen Extinktionsterms bei der Berechnung der Ozonkonzentration deutlich unter 1 % zu halten.

In Wirklichkeit ist die Luftdichte jedoch erheblich besser bekannt und tabellarisch erfaßt /18,19/. Aktuelle Daten der Luftdichte und Temperatur in der unteren Stratosphäre (bis 35 km Höhe) lassen sich zudem durch Ballonsondenmessungen am nahegelegenen Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg gewinnen.

Die Rayleighstreuung selbst ist mathematisch mit hoher Genauigkeit beschreibbar, wenn man neben der charakteristischen Wellenlängenabhängigkeit (vierte Potenz der Wellenlänge) auch die Dispersion des Brechungsindex der Luft und andere Effekte berücksichtigt. Die Genauigkeit der berechneten Ozonkonzentration ist durch sie nicht eingeschränkt. Bei der Auswertung wurden für die verschiedenen interessierenden Wellenlängen unter Berücksichtigung von /44-46/ folgende Werte des Streuwirkungsquerschnitts σ und des differentiellen Rückstreuwirkungsquerschnitts $\sigma(\pi)$ benützt:

$\lambda(\text{nm})$	$\sigma_R(\lambda)$	$\sigma_R(\pi; \lambda)$
308.0 (XeCl)	$5.04 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$	$5.91 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$
338.4 (CH_4)	$3.37 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$	$3.95 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$
339.5 (D_2)	$3.34 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$	$3.92 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$
353.2 (H_2)	$2.82 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$	$3.31 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$

Insgesamt zeigt sich damit, daß der Einfluß der Korrekturterme B und A in Höhen über 30 km gut überblickt werden kann. Der Korrekturterm B ist bedeutungslos. Der Korrekturterm A kann leicht in die Rechnung mit einbezogen werden. Daraus kann die Schlußfolgerung gezogen werden, daß der Abstand der beiden Meßwellenlängen nicht von wesentlicher Bedeutung für die Genauigkeit der Ozonmessungen in der oberen Stratosphäre ist.

4.4.3. Der Bereich bis 30 km Höhe: Einfluß des Terms B

Andere Verhältnisse liegen in niedrigen Höhen vor. Aus Abb. 12 ist ersichtlich, daß das Aerosolstreuverhältnis im September 1983 (ca. 500 Tage nach dem Ausbruch des El Chichon) noch Werte von $S = \beta_M/\beta_R = 0.5$ erreichte. Untersucht man die Aerosolstreuung näher, stellt man fest, daß auf Grund der damals noch vorhandenen Schichtstruktur sich der Gradient des Streuverhältnisses im Bereich der stratosphärischen Aerosolschicht maximal um $\Delta S = 0.1$ in einem Höhenintervall von einem Kilometer änderte. In den Monaten davor waren auch ausgeprägtere Gradienten möglich, nach dem September 1983 glätteten sich die Strukturen und damit die Gradienten aber immer mehr (vgl. Abb. 11).

Um daraus eine eher konservative Abschätzung des durch den Korrekturterm B verursachten Fehlers zu gewinnen, sei für die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolstreuung ein möglicher Exponent η im Bereich $\eta = 1.6 \pm 0.8$ angenommen. Bezeichnet man den Beitrag des differentiellen Rückstreutterms B (Gl. (10a) und (10c)) bei der Berechnung der Ozonkonzentration mit $N_{O_3}^B$, so läßt sich Gl. (10c) umformen, so daß sich mit $\beta_{ij} = \beta_R(R_i, \lambda_j) + \beta_M(R_i, \lambda_j) = \beta_R(R_i, \lambda_j) \cdot (1 + S_{ij})$ ergibt:

$$N_{O_3}^B = \frac{1}{2 \cdot \Delta R \cdot \Delta \sigma_{O_3}} \ln \frac{\beta_R(R_i, \lambda_j) \cdot (1 + S_{11}) \cdot \beta_R(R_i, \lambda_j) \cdot (1 + S_{22})}{\beta_R(R_i, \lambda_j) \cdot (1 + S_{21}) \cdot \beta_R(R_i, \lambda_j) \cdot (1 + S_{12})}$$

Hierbei ist S wieder das Aerosolstreuverhältnis; der erste Index bezeichnet die Entfernung, der zweite Index die Wellenlänge. Ähnlich wie in Kap. 4.4.2. können jetzt die Rayleighrückstreukoeffizienten β_R eliminiert werden. Das Streuverhältnis läßt sich, wie in Kap. 4.4.1. dargelegt, direkt aus der Messung bei der Referenzlinie ableiten. Die Größen S_{12} und S_{22} sind also bekannt. Wegen des Ansatzes für die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolstreuung (Gl. (19a)) läßt sich die Streuung bei der Absorptionslinie λ_1 daher ausdrücken als

$$S_{i1} = S_{i2} \cdot (\lambda_1/\lambda_2)^{4-\eta} ; \quad i=1,2$$

Damit kann $N_{O_3}^B$ abgeschätzt werden als

$$N_{O_3}^B = \frac{1}{2 \cdot \Delta R \cdot \Delta \sigma_{O_3}} \ln \frac{(1 + S_{22}) \cdot \{1 + S_{12} (\lambda_1/\lambda_2)^{4-\eta}\}}{(1 + S_{12}) \cdot \{1 + S_{22} (\lambda_1/\lambda_2)^{4-\eta}\}}$$

In der nachfolgenden Zusammenstellung (Tab. 8) ist für 15 km bzw. 20 km Höhe ($\lambda_2 = 353$ nm) der relative Beitrag der Größe $N_{O_3}^B$ bei der Berechnung der Ozonkonzentration unter der Annahme $\eta = 1.6$ angegeben. Dabei sind die stark unterschiedlichen Streuverhältnisse im Februar 1983 (sehr hohes S), im September 1983 (mittleres S) und Juli 1984 (S nähert sich wieder dem Hintergrundwert vor der Eruption des El Chichon) berücksichtigt. Eine dementsprechend ausgeprägte Zeitabhängigkeit zeigt auch der systematische Fehler (Tab. 8, letzte Spalte), der bei dieser konservativen Abschätzung eine mögliche Änderung der Größenverteilung der Aerosole in der Stratosphäre berücksichtigt, mit der eine Variabilität des Exponenten der Wellenlängenabhängigkeit von $\eta = 1.6 \pm 0.8$ verbunden ist.

Tab. 8: Beitrag des Terms B zur Berechnung der Ozonkonzentration in einer Höhe von 15 km bzw. 20 km

Für drei Zeitpunkte ist das maximale Aerosolstreuverhältnis S und dessen maximale Änderung ($\Delta S = S_{22} - S_{12}$) innerhalb eines Höhenintervalls von einem Kilometer angegeben. Der daraus abgeleitete Beitrag $N_{O_3}^B$ des Korrekturterms B zur Ozonkonzentration (vierte Spalte) ist unter der Annahme berechnet, daß die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolstreuung im UV durch einen Exponenten $\eta=1.6$ beschrieben werden kann. In der letzten Spalte ist der systematische Fehler angegeben, der durch einen möglicherweise vom Wert $\eta = 1.6$ abweichenden Exponenten der Wellenlängenabhängigkeit der Streuung hervorgerufen werden könnte.

Zeitpunkt	S(max)	$\Delta S(\text{max})$ (pro km)	$N_{O_3}^B/N_{O_3}(\eta=1.6)$ 15 km / 20 km	$\delta N/N(\delta\eta=\pm 0.8)$ 15 km / 20 km
Feb. 83	1.5	0.3	30% / 16%	10% / 5%
Sep. 83	0.5	0.1	20% / 11%	6% / 3%
Juli 84	0.15	0.02	7% / 4%	2% / 1%

Tabelle 8 zeigt, daß bei der Berechnung der Ozonkonzentration der differentielle Rückstreuterm B wegen der relativ großen Differenz der verwendeten Meßwellenlängen in sehr niedrigen Höhen solange berücksichtigt werden muß, bis die Hintergrundkonzentration der Aerosole wieder erreicht ist. Mit wachsender Höhe wird dabei die Bedeutung des Terms B rasch reduziert, weil zum einen die Ozonkonzentration erst in größeren Höhen ihr Maximum erreicht, die Aerosolstreuung in Höhen über 20 km dagegen normalerweise schnell abnimmt.

Die in Tab. 8 angegebenen Werte sind nur als Richtwerte aufzufassen, da die Konzentration der Aerosole im interessierenden Zeitraum starken Fluktuationen unterlag. Damit ist auch das Aerosolstreuverhältnis wie auch dessen Gradient als Funktion der Höhe sehr variabel. Der systematische Fehler kann zur Zeit einer außerordentlich starken Aerosolstreuung (Februar 1983) in 15 km Höhe bis zu 10 % betragen, fällt aber bereits in 20 km auf die Hälfte. Eine derart außergewöhnlich starke Injektion von Aerosolen in die Stratosphäre ist jedoch äußerst selten; die letzte vergleichbare Vulkaneruption liegt bereits etwa 70 Jahre (!) zurück. Kleinere vulkanische Injektionen von Aerosolen in die Stratosphäre, wie sie im Schnitt etwa alle fünf Jahre stattfinden, dürften in etwa die im Juli 1984 vorgefundenen Verhältnisse hervorrufen. Die ohne Vulkantätigkeit noch vorhandene Hintergrundkonzentration entspricht etwa den Verhältnissen im November 1984. Der systematische Fehler fällt dann unter die 1%-Marke.

Insgesamt bedeutet dies, daß nur das zufällige Zusammentreffen der Eruption des Vulkans El Chichon mit der Aufnahme des Meßbetriebs des Ozonlidars eine Berücksichtigung des differentiellen Rückstreutterms in der unteren Stratosphäre nötig macht. Unter ungestörten Verhältnissen ist sowohl $S(\max)$ als auch $\Delta S(\max)$ erheblich kleiner. Hinzu kommt, daß beim Einsatz von D_2 als Ramanmedium auf Grund der kleineren Ramanverschiebung die Größe des Terms B um ca. 30 % gesenkt werden kann.

4.4.4. Die Aerosolextinktion in der unteren Stratosphäre

Es bleibt noch der aerosolbedingte Beitrag des differentiellen Extinktionsterms A zu diskutieren. Dies soll wieder in der Form geschehen, daß der entsprechende Beitrag zur Ozonkonzentration $N_{O_3}^A$ (siehe Gl. (10b) und (10c)) abgeschätzt wird.

Statt des Rückstreuoeffizienten β_M geht jetzt der Extinktionskoeffizient α_M in die Rechnung ein. Dieser kann aus der Messung der Rückstreuintensitäten nicht direkt erschlossen werden. Infolgedessen muß aus der Theorie ein Wert für das Rückstreuverhältnis $\rho_M = (\beta/\alpha)_M$ abgeleitet werden.

Bei der Rayleighstreuung nimmt das Rückstreuverhältnis einen festen Wert an: $\rho_R = (\beta/\alpha)_R = 0.117$ (siehe auch Kap. 4.4.2.). Im Gegensatz dazu sind die Verhältnisse bei der Aerosolstreuung komplizierter. Fast immer liegt der Wert $(\beta/\alpha)_M$ deutlich unter dem für Rayleighstreuung, er ist zudem eine Funktion der Größenverteilung und Wellenlänge.

Nimmt man wieder die in Kap. 4.4.1. vorgestellten Größenverteilungen und berechnet daraus das Rückstreuverhältnis, so findet man

$$\rho_M = (\beta/\alpha)_M = 0.030 \quad (\text{Verteilung I})$$

$$\rho_M = (\beta/\alpha)_M = 0.015 \quad (\text{Verteilung II})$$

Im Weiteren soll daher ein mittlerer Wert $(\beta/\alpha)_M = 0.022 \pm 0.007$ angenommen werden. Der entsprechende Beitrag zur Ozonkonzentration $N_{O_3}^A$ ist nach Gl. (10b) und (10c) gegeben:

$$N_{O_3}^A = N_M \cdot \Delta \sigma_M / \Delta \sigma_{O_3} = \Delta \alpha_M / \sigma_{O_3}(\lambda_1) = \\ = [\alpha_M(\lambda_2) / \sigma_{O_3}(\lambda_1)] \cdot \{(\lambda_2/\lambda_1)^\eta - 1\}$$

Hierbei ist $\alpha_M(\lambda_2)$ gegeben durch $\beta_M(\lambda_2)/\rho_M$. Die Hauptfehlerquelle ist hier sicherlich die Unsicherheit im Rückstreuverhältnis, so daß für eine grobe Abschätzung der vergleichsweise geringe Einfluß der Schwankungsbreite des Exponenten vernachlässigt werden kann.

Tab. 9: Der relative Beitrag der Aerosolextinktion und ihr Einfluß auf die Meßgenauigkeit, hervorgerufen durch die Unsicherheit in der Kenntnis des Rückstreuverhältnisses ρ_M .

Zeitpunkt	$S(\lambda_2)$ 15 km / 20 km	$N_{O_3}^A/N_{O_3}(\rho=0.022)$ 15 km / 20 km	$\delta N/N(\delta\rho=\pm 30\%)$ 15 km / 20 km
Feb. 83	0.7 / 1.6	23 % / 8.0 %	$\pm 11\%$ / $\pm 2.9\%$
Sep. 83	0.3 / 0.5	10 % / 2.6 %	$\pm 3\%$ / $\pm 1.1\%$
Juli 84	0.15 / 0.15	5 % / 0.8 %	$\pm 2\%$ / $\pm 0.3\%$

Nimmt man für die Diskussion wieder die beobachtete Aerosolstreuung im Februar und September 1983 sowie Juli 1984 her, so sieht man, daß die Aerosolextinktion vor allem in niedrigen Höhen bei der Berechnung der Ozonkonzentration berücksichtigt werden muß. Ihr Anteil betrug im Lauf des Jahres 1983 rund 10 % und sank im Juli 1984 auf 5% ab. Ohne weitere vulkanische Tätigkeit ist damit zu rechnen, daß dieser Wert sich auf etwa 1% reduziert.

In 20 km Höhe sinkt der Einfluß der Extinktion im Vergleich zu 15 km Höhe um einen Faktor vier. Der systematische Fehler $\delta N/N$, der durch Unkenntnis des aktuellen Rückstreuverhältnisses bedingt wird, ist daher in 20 km Höhe nur bei extrem hoher Aerosolkonzentration von Bedeutung, wie sie um die Jahreswende 1982/83 auftrat. In 15 km Höhe dagegen, wo der relative Beitrag des Extinktions-terms für die Genauigkeit der Ozonkonzentration ansteigt, kann bei extremer vulkanischer Tätigkeit ein systematischer Fehler von mehr als 10 % auftreten, normalerweise sollte jedoch ein Beitrag von einigen Prozent nicht überschritten werden. In längeren Zeiträumen ohne vulkanische Tätigkeit sollte dieser Anteil unter ein Prozent fallen.

4.5. Das Absorptionsverhalten von Ozon in der Hugginsbande

Die Absorptionseigenschaften von Ozon im Bereich um 300 - 350 nm sind bereits seit mehr als dreißig Jahren Gegenstand der Forschung /30,47-51/; übereinstimmend wurde dabei festgestellt, daß der Absorptionswirkungsquerschnitt zwischen 0.3 und 700 Torr druckunabhängig ist. Dagegen wurde das Verhalten bei unterschiedlichen Temperaturen bisher eher kontrovers beschrieben /50,51/.

Seit kurzem liegt erstmals auch eine systematisch angelegte Messung mit hoher Auflösung (0.02 nm) /47,47a/ vor. Dabei wurde das Absorptionsverhalten des Ozons bei Temperaturen zwischen 200 und 300 K untersucht, ein Bereich, der die Temperaturverhältnisse in der Atmosphäre bis 50 km Höhe gut überdeckt.

Die absolute Genauigkeit dieser Messungen wird mit 4 % angegeben. Die relative Genauigkeit liegt im Bereich um 308 nm bei einem Prozent, im Bereich um 350 nm liegt sie bei ca. 5 %.

Da das breitbandige Emissionsspektrum des XeCl-Lasers im wesentlichen aus zwei nahezu gleichstarken Linien bei 307.9 und 308.15 nm /11,35/ besteht, wurde nach /47/ der effektive Absorptionsquerschnitt aus dem Mittelwert der Absorption bei diesen beiden Wellenlängen berechnet. Die Absorption auf den beiden Linien differiert im Temperaturbereich 200 - 300 K um maximal 2 %. Zwar ist es denkbar, daß sich das Verhältnis der Intensitäten der beiden Emissionslinien im Laufe einer längeren Messung ändert. Doch ist infolge dieser geringen Differenz im Absorptionsverhalten nicht zu befürchten, daß dadurch die Genauigkeit der Messung beeinträchtigt wird.

Im einzelnen sind für eine Temperatur von -30°C folgende Werte des Absorptionswirkungsquerschnitts für die Laserlinie (308.0 nm) und die drei durch stimulierte Ramanstreuung in CH_4 , D_2 und H_2 erzeugbaren Referenzlinien verwendet worden:

λ (nm)	$\sigma_{O_3}(t=-30\text{ }^{\circ}\text{C})$
308.0	$1.21 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$
338.4	$0.82 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$
339.2	$0.65 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$
353.2	$0.07 \cdot 10^{-21} \text{ cm}^2$

Man sieht, daß die Absorption bei den Referenzlinien bestenfalls ein Prozent der Absorption bei der Laserwellenlänge ausmacht. Die Temperaturabhängigkeit der Referenzlinien ist somit vernachlässigbar. Eine Temperatur von $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ stellt ohnehin für weite Bereiche der Stratosphäre eine gute Näherung dar.

Das Temperaturverhalten des gemittelten Absorptionsquerschnitts bei 308.0 nm ist jedoch nicht vernachlässigbar. In /47a/ wird die Temperaturabhängigkeit durch einen quadratischen Fit beschrieben (Temperatur t in $^{\circ}\text{C}$, σ in 10^{-20} cm^2):

$$\sigma(t) = c_0 + c_1 \cdot t + c_2 \cdot t^2 \quad (20)$$

wobei $c_0 = 12.83$; $c_1 = 2.84 \cdot 10^{-2}$; $c_2 = 1.27 \cdot 10^{-4}$.

Es bleibt noch zu diskutieren, wie sich eine Änderung der Temperatur in der Stratosphäre auf die Genauigkeit der Ozonmessung niederschlägt. Die mittlere jahreszeitliche Schwankung der Temperatur für eine vorgegebene Höhe beträgt typisch 15 - 20 K. Nach Gl. (20) entspricht dem eine Änderung des Ozonabsorptionswirkungsquerschnitts von etwa 2 %. Bei der Auswertung wurde daher die jahreszeitliche Schwankung der Temperatur als Funktion der Höhe mitberücksichtigt /17/. Teilweise wurde auch das von Ballonsonden am nahegelegenen Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg ermittelte aktuelle Temperaturprofil verwendet. Da im allgemeinen die Abweichung des stratosphärischen Temperaturprofils vom CIRA-Model nur wenige Grad beträgt (Ref. /17/, S. 187 ff), kann davon ausgegangen werden, daß der Einfluß stratosphärischer Temperaturschwankungen auf die Genauigkeit der Ozonprofile deutlich unter einem Prozent liegt.

Es ist jedoch nicht auszuschließen, daß beim Vorliegen von ausgeprägten Temperaturanomalien, die im Winter gelegentlich auftreten können, einzelne Ozonprofile systematische Fehler in der Größenordnung von 1 - 2 % aufweisen können.

4.6. Gesamtbetrachtung

Eine Diskussion der mit der hier vorgestellten Lidarapparatur erzielbaren Genauigkeit der Ozonkonzentration erfordert eine differenzierte Betrachtung. Möchte man Lidarmessungen mit den von anderen Verfahren erzielten Ergebnissen vergleichen, so ist die absolute Genauigkeit die relevante Größe. In den Vergleich verschiedener Messungen eines Systems geht dagegen der relative Fehler ein.

Der absolute Fehler der hier vorgestellten Ozonprofile ist hauptsächlich durch die Unsicherheit im Ozonabsorptionswirkungsquerschnitt (4%) gegeben, wobei in Zeiten erhöhter Vulkantätigkeit ein geringer zusätzlicher Beitrag in der unteren Stratosphäre (bis ca. 20 km Höhe) durch die Aerosolkorrektur einfließen kann. In Höhen über 45 km begrenzt der statistische Fehler die erzielbare absolute Genauigkeit.

Der relative Fehler wird für den Ozonabsorptionswirkungsquerschnitt mit nur einem Prozent angegeben. Somit ist der Einfluß der Aerosole in der unteren Stratosphäre bis 20 km Höhe die dominierende Fehlerquelle (ca. zwei Prozent). Bei sehr starker Vulkantätigkeit kann dieser Wert auf über zehn Prozent ansteigen. Unter Umständen macht sich der Einfluß der Aerosole dann sogar noch im Höhenbereich zwischen 20 und 30 km bemerkbar. In Höhen über 40 km wird dagegen die statistische Genauigkeit die dominierende Fehlerquelle.

Schließlich muß noch darauf hingewiesen werden, daß sich diese Überlegungen auf die Verhältnisse bei Nachtmessungen beziehen. Bei den Tagmessungen spielt im Moment praktisch ausschließlich der statistische Fehler die entscheidende Rolle (vgl. Tab. 6).

5. Meßergebnisse

Mit dem Lidarsystem auf der Zugspitze wurden Messungen im Zeitraum Oktober 1982 bis Juli 1984 durchgeführt. Sie erstrecken sich auf den Höhenbereich zwischen etwa 15 und 50 km. Die übliche Maßeinheit bei Lidarmessungen ist $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Es entspricht $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ einer Teilchenkonzentration von $1.25 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$.

5.1. Der Jahresgang der Ozonkonzentration

Eine der hervorstechendsten Eigenschaften der atmosphärischen Ozonkonzentration ist ihre außerordentlich hohe Variabilität im Laufe eines Jahres. Eine Vorstellung der Schwankungsbreite vermittelt Abb. 14, wo für vier verschiedene Monate die Mittelwerte für einzelne Nächte dargestellt sind. Es handelt sich dabei um die Monate November 1982 (1), Februar 1983 (2), Juli 1983 (3) und September 1983 (4). Gegenüber den in Abb. 14 sichtbaren Schwankungen ist der Meßfehler vernachlässigbar klein (vgl. auch Kapitel 4.).

Dabei fallen bereits die wesentlichen Gesichtspunkte auf. Zum einen ist dies die unterschiedlich hohe maximale Ozonkonzentration, die zwischen etwa 280 und 400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ schwankt. Zum anderen fällt insbesondere in der unteren Stratosphäre die stark unterschiedliche Streubreite der Ozonkonzentration auf.

Genauer läßt sich diese Schwankungsbreite als Funktion der Jahreszeit in Abb. 15 erkennen. Im Spätherbst (2) und Winter (1) ist sie wesentlich größer als im Frühjahr (4), Sommer (5) und Frühherbst (3). Oberhalb von etwa 35 km Höhe ist jedoch offensichtlich keine Abhängigkeit von der Jahreszeit mehr erkennbar.

Dieses Verhalten läßt sich dadurch erklären, daß die Ozonkonzentration in verschiedenen Höhenbereichen der Stratosphäre durch unterschiedliche Faktoren bestimmt wird (vgl. Kap. 2.). Die Ozonkonzentration in Höhen über 30 km ist vornehmlich das Resultat photochemischer Reaktionen. Der Ozongehalt in der unteren Stratosphäre ist jedoch überwiegend durch Transportvorgänge bestimmt.

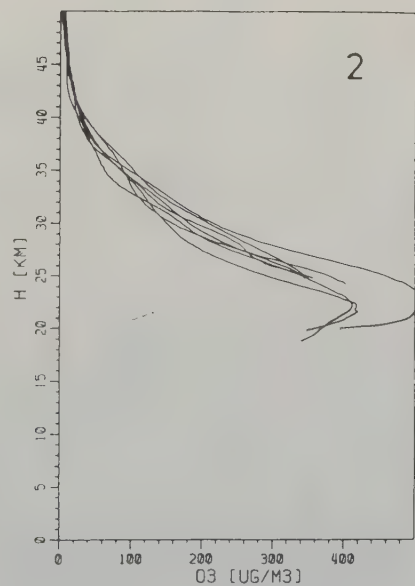
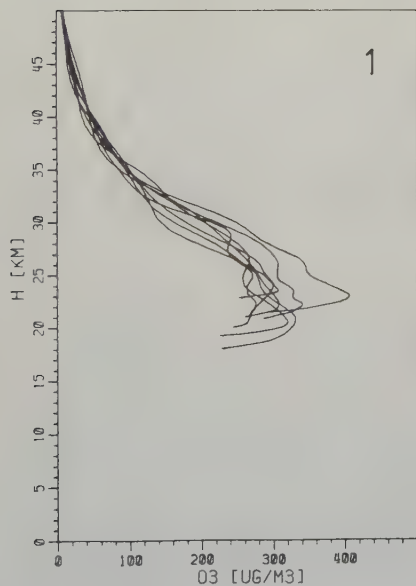
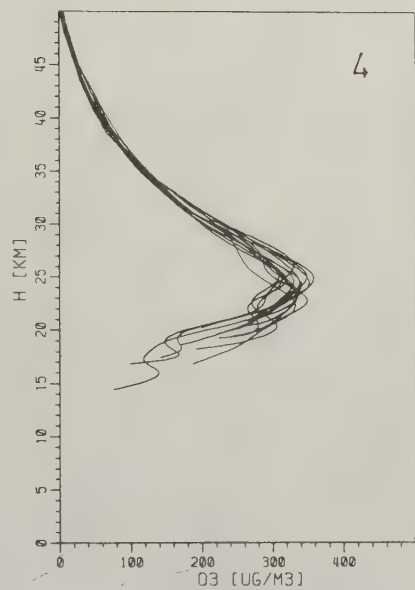
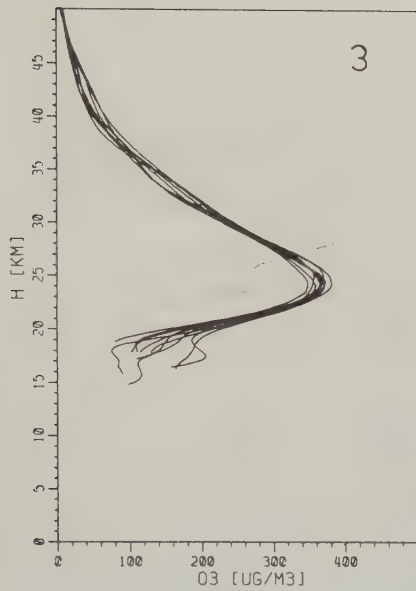


Abb. 14: Überblick über die Ozonkonzentrationsprofile (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) in den Monaten November 1982 (1), Februar 1983 (2), Juli 1983 (3) und September 1983 (4). Jede Einzelkurve entspricht dem Mittelwert einer Nacht.

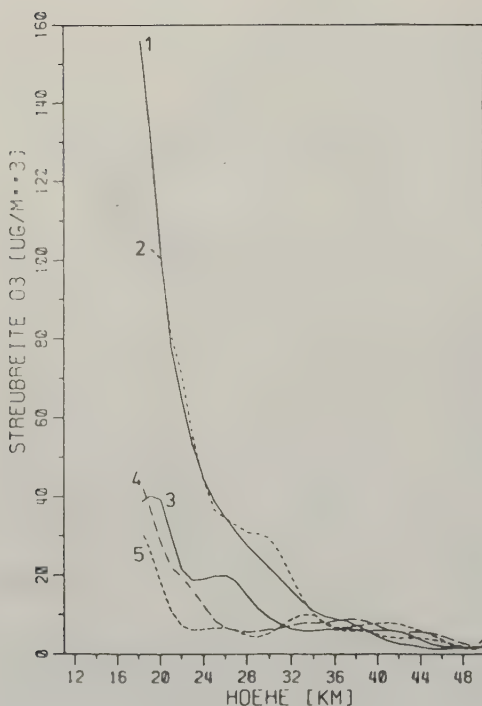


Abb. 15: Die Streubreite der Ozonkonzentrationsprofile (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) in Abhängigkeit von der Jahreszeit:

- 1 = November
- 2 = Februar
- 3 = September
- 4 = Mai
- 5 = Juli

Infolgedessen läßt sich die im Winter deutlich höhere Turbulenz der Atmosphäre an der Schwankungsbreite der Ozonkonzentration ablesen.

Einen Eindruck vom Ablauf und von der Zeitskala dieser dynamischen Vorgänge vermittelt Abb. 16. Hier ist die zeitliche Entwicklung des Ozonkonzentrationsprofils im Verlauf des September 1983 dargestellt. Der besseren Übersichtlichkeit wegen sind hier Abszisse und Ordinate im Vergleich zu Abb. 14/4 vertauscht. Man sieht, daß Veränderungen des Ozonprofils nicht willkürlich von Tag zu Tag erfolgen, sondern sich langsam im Laufe von mehreren Tagen ausbilden. Besonders deutlich läßt sich dieses Verhalten anhand charakteristischer Merkmale erkennen, wie sie insbesondere zu Beginn des Monats (7., 8., 13.) in etwa 25 km Höhe und am

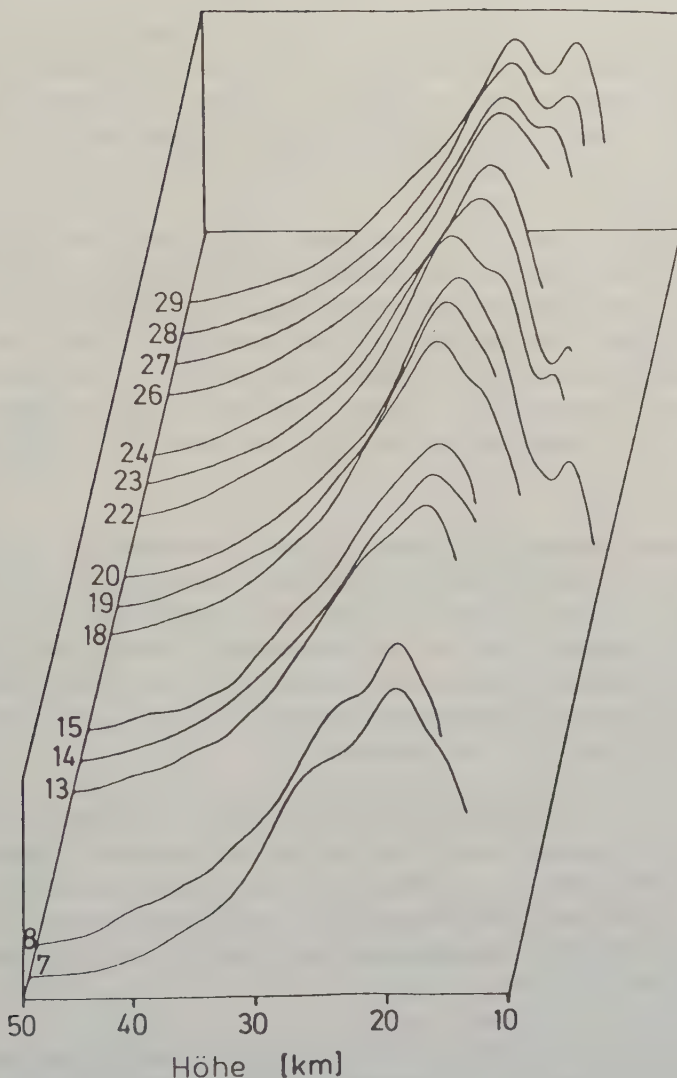


Abb. 16: Zeitlichen Entwicklung der Ozonkonzentration im September 1983 vom 7./8. (vorderste Kurve) bis zum 29./30. (hinterste Kurve). Größere Lücken zwischen den Messungen symbolisieren Schlechtwetterperioden. Aus Gründen der übersichtlichen Darstellung ist hier die Höhe nicht als Ordinate, sondern als Abszisse (von rechts nach links zunehmend) dargestellt. Ordinate ist die Ozonkonzentration.

Ende des Monats (27., 28., 29.) in etwa 20 km Höhe auftraten. Eine Studie nach Art von Abb. 16, bei der häufige Beobachtungen (15 Nächte im Verlauf eines Monats) und lange Mittelungszeiten (typisch 8 Stunden pro Nacht) erforderlich waren, ist praktisch mit keiner anderen Ozonmeßtechnik durchführbar.

Besonders aufschlußreich ist die Untersuchung des Jahresgangs der Ozonkonzentration für verschiedene Höhen, wie sie in Abb. 17 in Höhenstufen von 5 km gezeigt ist. In dieser Darstellung läßt sich die Eintrittszeit der Extrema der Ozonkonzentration für verschiedene Höhen erkennen. In 21 km Höhe liegt das stark ausgeprägte Maximum im Winter und Frühjahr. Das Minimum ist im Herbst vorzufinden, wobei die Konzentration fast auf die Hälfte des Maximalwertes abfällt.

In 25 km Höhe ist das Wintermaximum stark abgeschwächt, es tritt jedoch ein etwa gleichstarkes Sekundärmaximum im Sommer auf. In 30 km Höhe ist das Wintermaximum kaum noch erkennbar, das Sommermaximum ist dagegen sehr deutlich ausgeprägt. Dieses Verhalten ändert sich in größeren Höhen nicht mehr. Offensichtlich ist der Bereich um 25 km Höhe eine Übergangsregion zwischen zwei Höhenbereichen mit unterschiedlichem Jahresgang.

Dieses Verhalten hat die gleiche Ursache wie die unterschiedliche Schwankungsbreite der Ozonkonzentration. In der oberen Stratosphäre, in der ein Großteil der UV-Strahlung der Sonne absorbiert wird, läuft die photochemische Erzeugung des Ozons (Reaktion R2 in Kap. zwei) am effektivsten im Sommer ab. Folglich tritt das Maximum der Ozonkonzentration im Sommer auf.

In der unteren Stratosphäre ist die Produktion des Ozons durch die solare UV-Strahlung nicht mehr der wesentliche Prozeß, der die Ozonkonzentration bestimmt. Vielmehr wird im Winter das Ozon aus Regionen höherer Konzentration, die am Äquator und damit näher an der sommerlichen Südhemisphäre liegen, in die mittleren Breiten der Nordhemisphäre transportiert.

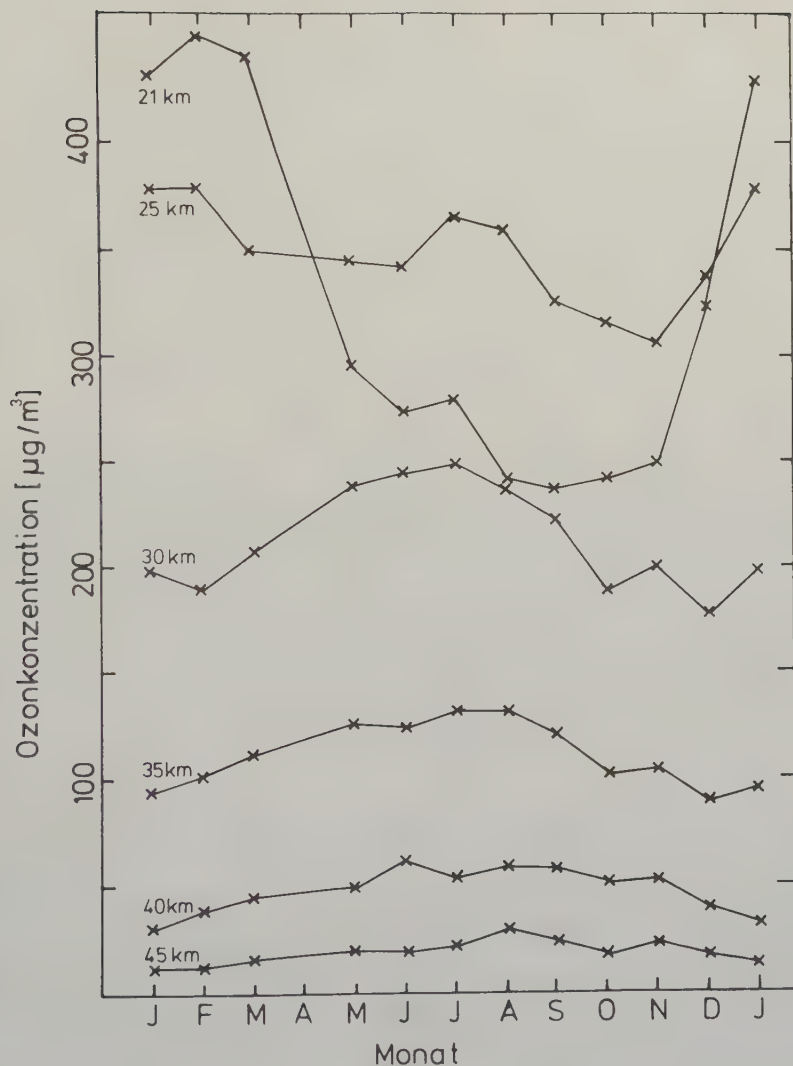


Abb. 17: Der Jahresgang der Ozonkonzentration (gemittelt über den Beobachtungszeitraum von knapp zwei Jahren) für verschiedene Höhen im Bereich zwischen 21 km und 45 km.

5.2. Einige ausgewählte Aspekte

Die Fähigkeit des hier beschriebenen Ozonlidarsystems, kontinuierlich über viele Stunden hinweg messen zu können, ermöglicht die Untersuchung der Frage, ob sich die Ozonkonzentration als Funktion der Tageszeit ändert. Aus der photochemischen Theorie läßt sich ableiten, daß in Höhen zwischen etwa 30 und 50 km während der Nacht und untertags keine Änderung der Konzentration auftreten sollte. Zur Zeit der Morgen- und Abenddämmerung ist jedoch aufgrund der schnellen Zu- und Abnahme der Strahlungsinintensität um mehrere Zehnerpotenzen eine geringfügige Veränderung der Konzentration zu erwarten. Eine Überprüfung dieser beiden Vorhersagen ist nach unserem Wissen bisher nicht erfolgt.

Wegen der Kleinheit der zu erwartenden Effekte ist für eine derartige Untersuchung eine hohe Genauigkeit erforderlich. In der oberen Stratosphäre wird nach Kap. 4.2. zum Erreichen einer Genauigkeit von wenigen Prozent die Beobachtung über eine ganze Nacht benötigt, also typisch zwölf Stunden. Um nun zu untersuchen, ob sich die Ozonkonzentration im Laufe einer Nacht systematisch ändert, ist es daher sinnvoll, die Nacht in Beobachtungszeiträume von jeweils einer Stunde Dauer zu unterteilen. Um die Genauigkeit des Nachtmittelwertes zu erreichen, ist folglich die Beobachtung über typisch zwölf Nächte erforderlich.

In unseren Breiten lassen sich geeignete Witterungsbedingungen am häufigsten im Herbst antreffen. Insbesondere ermöglichte die Wetterlage im September 1983 sogar die Beobachtung in 15 Nächten. In Abb. 18 sind die daraus abgeleiteten Linien gleicher Konzentration (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) als Funktion der Tageszeit aufgetragen. Die Untersuchung der statistischen Signifikanz dieser Daten hat ergeben, daß im Bereich der oberen Stratosphäre, in dem photochemisch bedingte Veränderungen denkbar wären, ein systematischer Gang der Ozonkonzentration im Laufe einer Nacht nicht nachweisbar ist.

Dagegen findet sich in 26 km Höhe - wo die Photochemie nicht mehr dominiert - ein statistisch signifikanter Trend einer Abnahme der

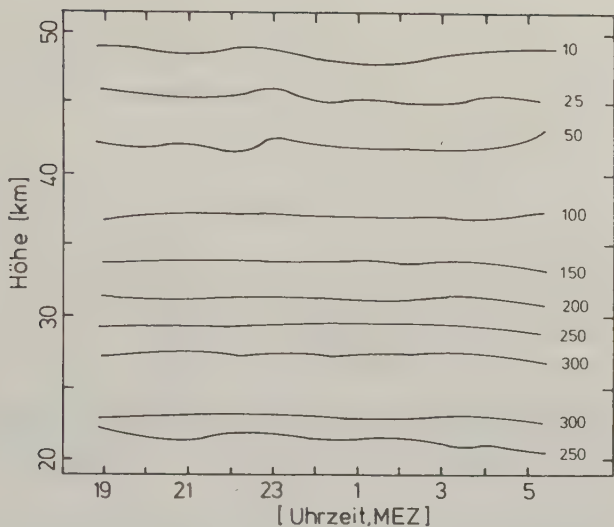


Abb. 18: Linien gleicher Ozonkonzentration als Funktion der Tageszeit im September 1983. Die am rechten Bildrand angegebenen Konzentrationswerte haben die Dimension $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

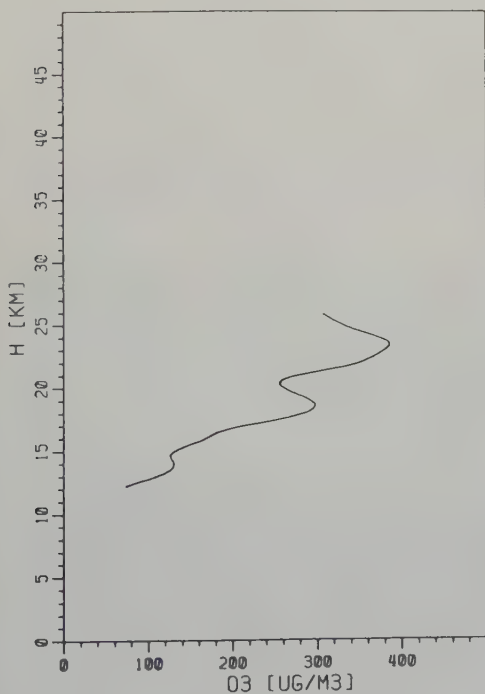


Abb. 19: Beispiel einer Tagmessung: das mittlere Ozonkonzentrationsprofil am Nachmittag des 1. 11. 1984 (Meßdauer drei Stunden)

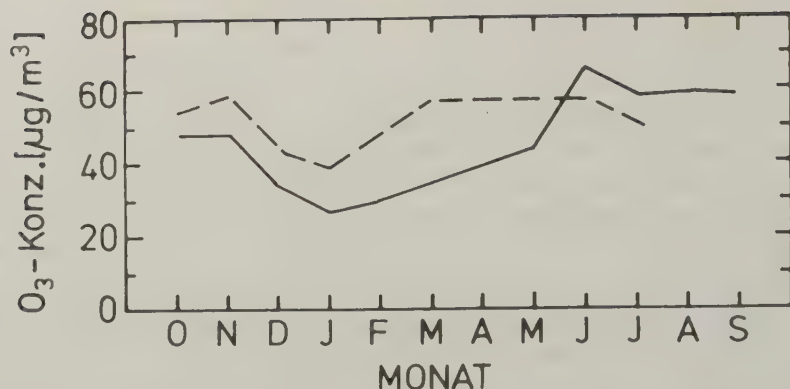


Abb. 20: Die Ozonkonzentration in 40 km Höhe im Zeitraum Oktober 1982 bis September 1983 (durchgezogene Kurve) und Oktober 1983 bis Juli 1984 (gestrichelte Kurve)

Ozonkonzentration im Laufe der Nacht um zwei Prozent. Die Ursache für dieses Verhalten ist noch unklar, es kann wohl kaum photochemisch bedingt sein.

Im Zusammenhang mit dieser Frage ist auch die Durchführung von Messungen am Tage wünschenswert (vgl. Kap. 4.3.). Die hierfür erforderlichen Maßnahmen (Verwendung eines neuen instabilen Resonators und eines Lyotfilters) wurden im Sommer 1984 durchgeführt. Abb. 19 zeigt ein Beispiel einer Tagmessung, wobei die Integrationsdauer drei Stunden beträgt. Der beobachtbare Höhenbereich entspricht ziemlich genau der in Kap. 4.3. durchgeführten Abschätzung (Tab. 6 / Fall A) Die statistische Genauigkeit des in Abb. 19 gezeigten Profils liegt somit zwischen fünf und zehn Prozent. Somit wäre es möglich, Tag/Nachtschwankungen in dieser Größenordnung nachzuweisen. Die bisherige Beobachtungsdauer am Tag ist jedoch zu kurz, um dieser Fragestellung nachgehen zu können.

Abschließend sei auf den von den Modellrechnungen vorhergesagten Abbau der Ozonkonzentration durch anthropogene Spurensubstanzen eingegangen. Nach Kap. 2 sollte dieser Abbau am ausgeprägtesten in etwa 40 km Höhe sein. Die Beobachtungen auf der Zugspitze überdecken einen Zeitraum von knapp zwei Jahren. Geht man von einer prognostizierten Abbaurrate von 1%/Jahr in 40 km Höhe aus, so ist also ein Abbau von 2% nachzuweisen.

In Abb. 20 ist der auf der Zugspitze gemessene Gang der Ozonkonzentration dargestellt. Die relative Genauigkeit dieser Monatsmittelwerte beträgt etwa 2 % bei einer Ortsauflösung von 2.5 km. Die Schwankungen von Jahr zu Jahr, wie sie Abb. 20 zeigt, sind also natürlichen Ursprungs. Sie sind deutlich größer als der für die letzten zwei Jahre prognostizierte Abbau von 2 %. Überdies scheint eher eine Tendenz zur Zunahme als zur Abnahme des Ozongehalts vorzuliegen. Erst in den letzten Beobachtungsmonaten hat sich dieser Trend wieder umgekehrt. Klarerweise ist eine Beobachtungsdauer von knapp zwei Jahren noch zu kurz, um trotz der hohen natürlichen Schwankung bereits eine definitive Aussage über den Abbau des Ozons in 40 km Höhe vornehmen zu können.

5.3. Vergleich mit Ballonsondenaufstiegen

Ein Vergleich des hier beschriebenen Systems mit anderen Ozonmeßtechniken ist für die Einschätzung der Leistungsfähigkeit des Ozonlidars von großer Bedeutung. Infolgedessen erfolgte eine Beteiligung an einer Vergleichskampagne verschiedener Ozonmeßverfahren (MAP/Globus-Kampagne, September 1983). In diesem Rahmen wurden im selben Zeitraum auch am nahe gelegenen Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg (ca. 40 km Entfernung zur Zugspitze) Ozonmessungen durchgeführt. Es handelt sich dabei um Ballonaufstiege mit elektrochemischen Konzentrationszellen, sog. Brewer/Mast-Sonden, wobei eine Höhe von 35 km erreicht werden kann (vgl. Einleitung).

Während die Auswertung mehrerer an der Kampagne beteiligter Arbeitsgruppen immer noch nicht abgeschlossen ist, liegen die Ergebnisse der auf dem Hohenpeißenberg durchgeführten Messungen bereits vor. Die enge Zusammenarbeit mit der dortigen Arbeitsgruppe gestattet es, bereits jetzt wesentliche Punkte eines Vergleichs zu diskutieren.

Aufgrund der stabilen Schönwetterlage konnte auf der Zugspitze vor allem in der zweiten Septemberhälfte ein nahezu lückenloser Meßbetrieb durchgeführt werden, so daß insgesamt in 15 Nächten

Messungen erfolgten. Auch am Hohenpeißenberg fanden im Gegensatz zu normalen Beobachtungsmonaten (etwa acht Ballonaufstiege am späten Vormittag) im September 1983 doppelt so viele Aufstiege statt, davon erstmals auch zwei Aufstiege in der Nacht.

Bei einem Vergleich der Lidar- und Ballonsondenprofile sollte die Übereinstimmung am besten bei guter zeitlicher Koinzidenz sein. Somit richtet sich das Interesse zunächst auf die Nächte, in denen gleichzeitig mit den Lidarmessungen auch Ballonaufstiege am Hohenpeißenberg durchgeführt wurden. Abb. 21a zeigt ein Ozonprofil (gestrichelt), das am Hohenpeißenberg gegen 23 Uhr am 20. 9. 1983 gemessen wurde. Verglichen damit ist das Nachtmittel des 20./21. September (durchgezogene Linie), das mit der Lidarapparatur auf der Zugspitze erhalten wurde.

Der Vergleich der beiden Messungen zeigt, daß das Ozonprofil des Hohenpeißenberg deutlich stärker strukturiert ist. Dies deutet den prinzipiellen Unterschied der beiden Methoden an. Beim Ballonaufstieg wird nur eine Momentaufnahme des Ozonprofils erfaßt, hingegen werden im Laufe einer Nacht rasch wechselnde Strukturen beim Ozonlidar durch die lange Integrationszeit herausgemittelt. Das bedeutet, daß die Messungen des Ozonlidars auch aussagekräftiger sind, weil die von den Ballonsonden aufgezeichnete Struktur nur für kurze Zeit Bestand hat.

Sieht man von diesen durch das verschiedenartige Meßprinzip bedingten Unterschieden ab, so ist die Form der beiden Profile doch sehr ähnlich. Das Maximum der Konzentration liegt bei beiden Messungen nahezu in der gleichen Höhe. Auch ein Sekundärmaximum in 16 km Höhe ist in beiden Profilen vorzufinden.

Normalerweise hat man die Nachtmittelwerte des Ozonlidars mit Messungen am Hohenpeißenberg zu vergleichen, die am Vormittag durchgeführt werden. Die Übereinstimmung der Ozonprofile beider Methoden ist dabei nicht immer so gut wie in Abb 21a. Ein Beispiel ist in Abb. 21b gezeigt (gestrichelt: Hohenpeißenberg, durchgezogen: Ozonlidar). Der Schwerpunkt dieser beiden Profile scheint etwas

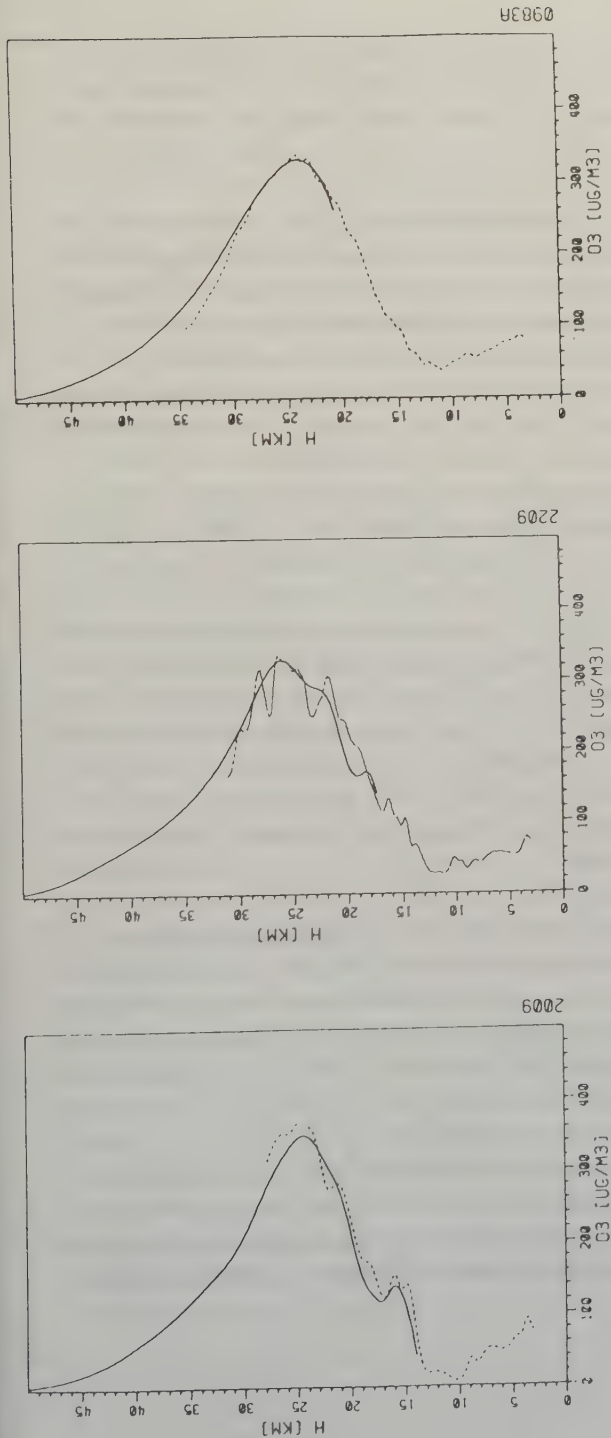


Abb. 21: Vergleich von Lidarmessung auf der Zugspitze (durchgezogene Kurve) und Ballonsondenaufstieg am Hohenpeissenberg (gestrichelte Kurve)
links: Mittelwert der Nacht vom 20. 9. auf 21. 9. 1983, verglichen mit einem Ballonsondenaufstieg am 20. 9. 1983 (23 Uhr MEZ)
Mitte: Mittelwert der Nacht vom 22. 9. auf 23. 9. 1983, verglichen mit einem Ballonsondenaufstieg am 23. 9. 1983 (8 Uhr MEZ)
rechts: Mittelwert für den September 1983, verglichen mit dem Mittelwert aus den Ballonsondenaufstiegen des September 1983.

gegeneinander verschoben zu sein. Trotz der sehr ausgeprägten Strukturierung des Ballonsondenprofils hat man den Eindruck, daß das Lidarprofil im Bereich des Ozonmaximums höhere Konzentrationswerte angibt.

Diese beiden Beispiele sollen die beim Vergleich einzelner Tagesprofile beobachtete Schwankungsbreite der Übereinstimmung demonstrieren. Die Übereinstimmung an anderen Tagen entspricht im allgemeinen einem Mittel zwischen den beiden soeben gezeigten Fällen. Möglicherweise spielt bei diesen Diskrepanzen zum Teil der Zeitunterschied eine nicht unbedeutende Rolle. Schließlich sollte auch daran erinnert werden, daß die Ballonsonden sich im Laufe der Messung bei entsprechenden Windverhältnissen bis zu einigen hundert Kilometern vom Startplatz entfernen können. Eine unterschiedliche lokale Ozonkonzentration könnte daher durchaus zur Erklärung der beobachteten Diskrepanzen beitragen.

Eventuelle systematische Unterschiede zwischen den Profilen lassen sich unter diesen Voraussetzungen nur schwer erkennen. Aussagekräftiger in dieser Beziehung sollte ein Vergleich der mit den beiden Methoden erhaltenen monatlichen Mittelwerte im September 1983 sein. Die detaillierte Struktur der Ballonsondenprofile sollte sich dabei glätten, was einen Vergleich erleichtert. Auch der Einfluß unterschiedlicher lokaler Ozonkonzentrationen sollte sich dabei reduzieren.

In Abb. 21c ist dieser Vergleich der beiden Monatsmittelwerte durchgeführt. Es zeigt sich eine erstaunlich gute Übereinstimmung bis in Höhen von etwa 30 km. Die Abweichungen liegen innerhalb der für die Ozonsonden angegebenen Meßgenauigkeit von fünf Prozent. Im Bereich zwischen 20 und 30 km scheinen also beide Methoden zuverlässige Ozondaten zu liefern.

Anders ist dagegen die Situation oberhalb 30 km, wo allerdings auch die Meßgenauigkeit der Ozonsonden rasch abnimmt: hier zeigt sich mit zunehmender Höhe eine wachsende Tendenz der Sondendaten, zu niedrige Ozonwerte anzuzeigen. Dies könnte ein weiterer Hinweis auf die ohnehin umstrittene Zuverlässigkeit der Ozonsonden /52/ in großen Höhen sein.

6. Ausblick

Die hier vorgestellten Ergebnisse zeigen, daß die Technik der differentiellen Absorption sehr gut für die Bestimmung des Ozonvertikalprofils in der Stratosphäre geeignet ist. Nicht zuletzt auch der Vergleich mit den Ballonaufstiegen am Hohenpeißenberg verdeutlicht die Zuverlässigkeit des Lidarsystems. Damit steht jetzt ein Ozonmeßgerät zur Verfügung, das auch den interessanten Höhenbereich um 40 km mit hoher Genauigkeit erfassen kann. In Verbindung mit der Fähigkeit, kontinuierlich messen zu können, erbringt das hier vorgestellte Lidarsystem einen echten Fortschritt in der Ozonmeßtechnik.

Von besonderem Interesse ist dabei, daß angesichts der sehr schnell fortschreitenden Entwicklung in der Excimerlasertechnologie der Entwicklungsspielraum der hier vorgestellten Ozonlidartechnik bei weitem noch nicht ausgeschöpft ist. Dies gilt sowohl für Tag- als auch für Nachtmessungen. Bereits heute stehen XeCl-Laser mit deutlich besseren Betriebseigenschaften als der hier eingesetzte Typ zur Verfügung. Interessant sind dabei vor allem Systeme mit höherer Dauerleistung (für Nachtmessungen) und Systeme mit deutlich geringerer Strahldivergenz (für Tagmessungen).

Ein System mit höherer Dauerleistung würde es gestatten, auch im Höhenbereich oberhalb 40 km eine sehr hohe Genauigkeit zu erzielen. Andererseits könnte allgemein auch die Ortsauflösung verbessert werden. Die erzielbare Genauigkeit bei Verwendung eines bereits heute kommerziell erhältlichen XeCl-Lasers mit 250 Hz Repetitionsrate und 450 mJ Pulsenergie ist in Tabelle 10 angegeben. Dabei ist wieder die in Kap. 4.2. beschriebene Ortsauflösung zugrundegelegt. Es zeigt sich, daß die erforderlichen Integrationszeiten in der unteren Stratosphäre im Bereich von wenigen Minuten liegen. Selbst in 50 km Höhe kann noch eine Genauigkeit von fünf Prozent bei Mittelung über eine Nacht erreicht werden. Die Genauigkeit von Tagmessungen kann mit diesem System allerdings nicht wesentlich gesteigert werden (vgl. Tab. 6). Vielmehr sind dafür Maßnahmen zur Reduzierung des Strahlungshintergrundes effektiver.

Tab. 10: Erreichbare Meßgenauigkeit bei Verwendung eines Lasersystems mit höherer Dauerleistung

Es ist die benötigte Integrationsdauer (in Sekunden bzw. Minuten bzw. Stunden) für Nachtmessungen (zweite Spalte) und Tagmessungen (dritte Spalte) bei Verwendung eines XeCl-Lasers mit 250 Hz Wiederholfrequenz und 450 mJ Pulsenergie angegeben. Die gewünschte Genauigkeit der Ozonkonzentration $\delta N/N$ soll dabei zwischen 2 und 10 Prozent liegen. In der letzten Spalte ist das Verhältnis zwischen der Integrationsdauer bei Tag $t(T)$ und bei Nacht $t(N)$ angegeben.

Höhe (km)	Meßzeit bei Nacht $\delta N/N=2\%$ / $\delta N/N=5\%$	Meßzeit am Tag $\delta N/N=2\%$ / $\delta N/N=10\%$	$t(T)/t(N)$
20	10 s / 2 s	8 m / 18 s	46
25	13 s / 2 s	23 m / 55 s	107
30	1 m / 10 s	9 h / 21 m	528
35	5 m / 47 s	147 h / 6 h	1800
40	36 m / 6 m	133 h	
45	6 h / 1 h		
50	70 h / 11 h		

Wesentlich günstigere Perspektiven in Bezug auf Tagmessungen ergeben sich bei Verwendung eines Systems mit möglichst geringer Strahldivergenz und Bandbreite. Darüberhinaus muß nach Gl. (16a) eher Wert auf eine hohe Pulsenergie als auf eine hohe Wiederholfrequenz gelegt werden. Diese Eigenschaften treffen in besonderem Maße auf ein Oszillator-Verstärker-System zu, das durch die sog. "injection locking" - Technik gekoppelt ist.

Bei heute bereits kommerziell angebotenen Systemen (z.B. der von der Firma Lambda Physik (Göttingen) angebotene Typ EMG 150 ETS) kann man in etwa mit folgenden Spezifikationen rechnen: Die Strahldivergenz ist im Vergleich zum hier benützten System um einen Faktor 6.6 reduziert. Damit ließe sich der Raumwinkel des Empfangssystems um einen Faktor 44 verkleinern. Gleichzeitig er-

folgt die Emission des Lasers mit einer Bandbreite von nur etwa 0.01 nm. Dadurch, daß die Strahlung polarisiert ist, läßt sich der unpolarisierte Tageshintergrund zusätzlich um einen Faktor zwei im Vergleich zum Signal abschwächen. Schließlich ist auch noch auf die hohe Pulsenergie des Systems zu verweisen. Sie beträgt in optimierter Version etwa 450 mJ, allerdings nur mit 10 Hz Wiederholfrequenz. In Anbetracht der gerade auf dem Gebiet der Excimerlasertechnologie rasch fortschreitenden Entwicklung ist bereits in naher Zukunft mit noch besseren Spezifikationen zu rechnen /35/, so daß es sinnvoll erscheint, für die folgende Diskussion von einer Wiederholfrequenz von 50 Hz auszugehen.

Mit diesen Spezifikationen ist es möglich, den Strahlungshintergrund am Tag durch Verwendung sehr schmalbandiger Lyotfilter (0.03 nm Halbwertsbreite) und Reduzierung des Gesichtsfeldwinkels um einen Faktor 44 (s.o.) soweit einzudämmen, daß die Qualität der Tagmessung bis in 45 km Höhe sich praktisch nicht mehr von der der Nachtmessung unterscheidet.

In Tabelle 11 ist für ein derartiges System die Meßzeit angegeben um eine Genauigkeit von 2% bzw. 10% in verschiedenen Höhen zu erreichen. Die benötigte Integrationsdauer ist dabei wieder für Messungen bei Tag und bei Nacht berechnet. Insbesondere zeigt der Vergleich der Meßzeit bei Tag und bei Nacht, der in der letzten Spalte aufgeführt ist, daß sich mit diesem System der Strahlungshintergrund am Tag soweit eindämmen läßt, daß auch in der oberen Stratosphäre praktisch keine Verlängerung der Meßzeit im Vergleich zu einer Nachtmessung in Kauf genommen werden muß. Es bleibt allerdings die Frage zu klären, ob die bei der Rechnung vorausgesetzte Skalierung der Eigenschaften des Nachweissystems tatsächlich - und mit einem tragbaren finanziellen Aufwand - technisch machbar ist. Im übrigen wäre auch dieses Lasersystem dem momentan auf der Zugspitze eingesetzten System in Bezug auf seine mittlere Leistung überlegen.

Tab. 11: Erreichbare Meßgenauigkeit bei Verwendung eines sehr schmalbandigen Lasersystems

Angegeben ist die für das Erreichen einer Meßgenauigkeit von 2 % bzw 10 % benötigte Integrationszeit bei Verwendung eines Oszillator-Verstärker-Systems wie es bereits in naher Zukunft kommerziell verfügbar sein sollte. Es sind sowohl die Bedingungen für eine Messung am Tag als auch in der Nacht gezeigt (die Integrationsdauer ist in Sekunden bzw. Minuten bzw. Stunden angegeben). Die letzte Spalte gibt an, um wieviel länger die Meßzeit am Tag $t(T)$ im Vergleich zur Meßzeit in der Nacht $t(N)$ sein muß, um die gleiche Meßgenauigkeit zu erreichen.

Höhe (km)	Meßzeit bei Nacht $\delta N/N = 2\% \quad / \quad 10\%$	Meßzeit am Tag $\delta N/N = 2\% \quad / \quad 10\%$	$t(T)/t(N)$
20	0.8 m / 2.0 s	0.8 m / 2.0 s	1.0
25	1.1 m / 2.5 s	1.1 m / 2.5 s	1.0
30	5.3 m / 13.1 s	5.3 m / 13.1 s	1.0
35	24.2 m / 1.0 m	24.2 m / 1.0 m	1.0
40	3.0 h / 7.2 m	3.0 h / 8.1 m	1.1
45	29.8 h / 1.2 h	32.2 h / 1.6 h	1.3
50	425.0 h / 17.0 h	720.0 h / 28.8 h	2.1

Der Vergleich der beiden Tabellen 10 und 11 macht deutlich, daß ein Lidarsystem für Tagmessungen durchaus andere Spezifikationen erfüllen sollte als es für Nachtmessungen der Fall ist. Trotz deutlich geringerer Dauerleistung wäre ein Oszillator-Verstärker-System für Tagmessungen vorzuziehen.

LITERATURVERZEICHNIS

- /1/ J. Werner, K.W. Rothe, H. Walther, Laser und Optoelektronik 15, 17 (1983)
- /2/ J. Werner, K.W. Rothe, H. Walther, Appl. Phys. B 32, 113 (1983)
- /3/ World Meteorological Organisation: Global Ozone Research and Monitoring Project Nr. 12, Toronto (April 1982)
- /4/ F.S. Rowland, M.J. Molina, Rev. Geoph. and Sp. Phys. 13, 1 (1975)
- /5/ P.J. Crutzen, U. Schmailzl, Planet. Sp. Sci. 31, 1009 (1983)
- /6/ H.U. Dütsch, Planet. Sp. Sci. 31, 1053 (1983)
- /7/ Planet. Sp. Sci. 31, Nr. 7 (1983)
- /8/ D.J. Wuebbles et al., J. Geoph. Res. 88, 1444 (1983)
- /9/ A.J. Gibson, L. Thomas, Nature 256, 561 (1975)
- /10/ G. Megie et al., Nature 270, 329 (1977)
- /11/ O. Uchino et al., IEEE J. Qu. El. QE-15, 1094 (1979)
- /12/ J. Pelon, G. Megie, J. Geophys. Res. 87, 4947 (1982)
- /13/ P. Fabian et al., Nature 294, 733 (1981)
- /14/ D.J. Hofman, J.M. Rosen, Science 222, 325 (1983)
- /15/ W. Attmannspacher, R. Hartmannsgruber, FRG Contrib. Phys. Atmos. 49, 18 (1976)
- /16/ D.K. Killinger, A. Mooradian (Ed.), Optical and Laser Remote Sensing, Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (1983)
- /17/ E.D. Hinkley (Ed.), Laser Monitoring of the Atmosphere Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1976
- /18/ U.S. Standard Atmosphere, U.S. Government Printing Office, Washington D.C. (1976)
- /19/ CIRA 1972, Akademie-Verlag, Berlin 1972
- /20/ D. Deirmendjian, Electromagnetic Scattering of Spherical Polydispersions, American Elsevier Publ. Comp., New York (1969)
- /21/ A.K. Khragian, The Physics of Atmospheric Ozone, Keter Publishing House, Jerusalem (1975)
- /22/ F.A. Bower, R.B. Ward (Ed.), Stratospheric Ozone and Man, CRC Press, Boca Raton/Florida (1982)

- 123 R.G. Derwent, I.P. Sharp, AERE-R 9987, Harwell/Oxfordshire (Dezember 1980)
- /24/ T.H. Maugh III, Science 216, 396 (1982)
- 125 L.B. Callis et al., J. Geophys. Res. 88, 1401 (1983)
- /26/ J.B. Reagan et al., J. Geophys. Res. 88, 1473 (1983)
- /27/ F. Hasebe, J. Geophys. Res. 88, 6819 (1983)
- /28/ J.C. Gille et al., Science 225, 315 (1984)
- /29/ E. Vigroux, Ann. Phys. 8, 709 (1953)
- 130 E.C.Y. Inn, Y. Tanaka, J. Opt. Soc. Am. 43, 870 (1953)
- /31/ T.R. Loree et al., IEEE QE-15, 337 (1979)
- 132 D.W. Trainor et al., IEEE QE-18, 1929 (1982)
- 133 W.R. Trutna, R.L. Byer, Appl. Opt. 19, 301 (1980)
- 134 J.R. Murray et al., IEEE J. Qu. El. QE-15, 342 (1979)
- 134a G.V. Venkin et al., Sov. J. Quant. El. 5, 1348 (1976)
- 135 Lambda Physik (Göttingen), private Mitteilung
- 136 R.C. Whitten (Ed.), The Stratospheric Aerosol Layer, Topics Curr. Phys. 28, Springer Verlag, Berlin (1982)
- 137 NASA Technic. Memor. 84959, Ed.: W.R. Bandeen, R.S. Fraser (Dezember 1982)
- 138 A. Unsöld, Der neue Kosmos, Springer Verlag, Berlin (1967)
- 139 H.M. Steele, P. Hamill, J. Aerosol. Sci. 12, 517 (1981)
- 140 R.G. Pinnick et al., J. Atm. Sci. 33, 304 (1976)
- 141 D.J. Hofman, J.M. Rosen, J. Geophys. Res. 89, 4883 (1984)
- 142 J.J. Michalsky et al., Geophys. Res. Lett. 11, 76 (1984)
- 143 M. Ackerman, C. Lippens, Planet. Sp. Sci. 32, 17 (1984)
- 144 C. Fröhlich, G.E. Shaw, Appl. Opt. 19, 1773 (1980)
- 145 R. Penndorf, J. Opt. Soc. Am. 47, 176 (1957)
- 146 D.R. Bates, Planet. Sp. Sci. 32, 785 (1984)
- 147 R.D. McPeters, A.M. Bass, Geophys. Res. Lett. 9, 227 (1982)
- /47a/ A.M. Bass, Private Mitteilung (1984)
- /48/ M. Griggs, J. Chem. Phys. 49, 857 (1968)
- /49/ A.G. Hearn, Proc. Phys. Soc. 78, 932 (1961)
- /50/ E. Vigroux, Ann. Phys. 2, 209 (1967)
- 151 J.E. Davenport, Parameters for Ozone Photolysis as a Function of Temperature at 280 - 330 nm, FAA-EE-80-44 (April 1980)
- /52/ D.B.B. Powell, E.L. Simmons, Ann. Geophys. 25, 323 (1969)

DANKSAGUNG

H. Prof. Walther möchte ich an dieser Stelle für die äußerst interessante Themenstellung und die zahlreichen Anregungen danken.

Mein besonderer Dank gilt H. Dr. K.W. Rothe. Seine Zusammenarbeit und umfangreichen Diskussionsbeiträge waren für dieses Projekt äußerst wertvoll.

Die Gesprächsbereitschaft der Mitglieder am Lehrstuhl Walther möchte ich dankbar hervorheben.

Ein herzliches Dankeschön gilt den Mitgliedern der Mechanischen und der Elektronikwerkstatt der Sektion Physik sowie den Konstrukteuren H. Steffens und H. Schuhmann für ihre umfangreichen und stets prompt ausgeführten Arbeiten beim Aufbau der Laser-Radar-Apparatur.

Das Max-Planck-Institut für Extraterrestrische Physik stellte sein Höhenlabor auf der Zugspitze als Meßstandort zur Verfügung. Herzlichen Dank.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft bin ich für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit zu Dank verpflichtet.

LEBENS LAUF

Name:	Joachim Oswald Anton WERNER
Geburtsdatum:	18. Januar 1954
Geburtsort:	Eichstätt/Obb.
Familienstand:	verheiratet mit Ingrid WERNER, geb. FÜR HOLZER
Staatsangehörigkeit:	deutsch
Eltern:	Anton und Ida WERNER, geb. HECKEL

AUSBILDUNGSWEG

1960 - 1964	Volksschule in Eichstätt
1964 - 1973	Gymnasium in Eichstätt
1973 - 1974	Zivildienst
1974 - 1980	Physikstudium an der Ludwig-Maximilians- Universität in München
1980	Diplom
seit 1980	Angestellter an der Ludwig-Maximilians- Universität München Durchführung der Dissertation



Druck: Schadel GmbH 8600 Bamberg
Heiliggrabstraße 49a Tel.: 0951/65136